

(12) INTERNATIONAL APPLICATION PUBLISHED ACCORDING TO THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)

(19) World Organization for Intellectual Property [Logo] [Bar Code]
International Office

(43) International Publication Date
April 5, 2001 (4/5/2001)

PCT

(10) International Publication No.
WO 01/24203 A1

| | | | |
|------|---|---|--|
| (51) | International patent classification | 7: H01F 1/057 | (72) Inventor(s); and |
| (21) | International File No.: | PCT/EP00/09128 | (75) Inventor/applicant (<i>for US only</i>): KATTER, Matthias, [DE/DE]; Am Bachgraben 8, 63755 Alzenau (Germany), FERNENGEL, Wilhelm [DE/DE]; Essener Strasse 5, 63801 Kleinostheim (Germany). |
| (22) | International application date: | September 18, 2000 (9/18/2000) | |
| (25) | Language of application: | German | (74) Agent: WESTPHAL, MUSSGNUG & PARTNER; Mozartstrasse 8, 80336 Munich (Germany). |
| (26) | Language of publication: | German | (81) Destination countries (<i>national</i>): JP, US. |
| (30) | Priority information: | 199 45 942.8 September 24, 1999 (9/24/1999) DE | (84) Destination countries (<i>regional</i>): European patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). |
| (71) | Applicant (<i>for all destination countries except US</i>): | VACUUMSCHMELZE GMBH [DE/DE]; Grüner Weg 37, 63450 Hanau (Germany). | Published: - <i>With international search report.</i> <i>[Continued on next page]</i> |

[Bar Code]

(54) Title: BORON-LOW Nd-Fe-B ALLOY AND METHOD FOR PRODUCING PERMANENT MAGNETS ON THE BASIS OF SAID ALLOY

[see source for graphic]

(57) **Abstract:** The invention relates to boron-low Nd-Fe-B permanent magnets that have high coercive forces. To this end, the concentrations have to meet the following requirements: $26.9 \text{ wt.-%} \leq [\text{SE}]_{\text{eff}} \leq 33 \text{ wt.-%}$; $2.185 - 0.0442 [\text{SE}]_{\text{eff}} \leq [\text{B}]_{\text{eff}} \leq 1.363 - 1.0136 [\text{SE}]_{\text{eff}}$; $[\text{Dy} + \text{Tb} + \text{Ho}] \leq 50 \text{ %} [\text{SE}]_{\text{eff}}$; $0.5 \text{ wt.-%} \leq [\text{Co}] \leq 5 \text{ wt.-%}$; $0.05 \text{ wt.-%} \leq [\text{Cu}] \leq 0.3 \text{ wt.-%}$; $0.05 \text{ wt.-%} \leq [\text{Ga}] \leq 0.35 \text{ wt.-%}$; $0.02 \text{ wt.-%} \leq [\text{Al}] \leq 0.3 \text{ wt.-%}$.

WO 01/24203 A1

For an explanation of the two-letter codes, and other abbreviations, please refer to the explanations ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") at the top of each regular issue of the PCT-Gazette.

Beschreibung

Borarme Nd-Fe-B-Legierung und Verfahren zur Herstellung von Dauermagneten aus dieser Legierung

5

Die Erfindung betrifft eine Legierung auf der Basis von wenigstens einer Seltenen Erde, wenigstens einem Übergangsmetall und Bor sowie ein Verfahren zur Herstellung von Dauermagneten aus dieser Legierung.

10

Derartige Legierungen und Verfahren zur Herstellung von Dauermagneten aus dieser Legierung sind aus der EP-A-0 124 655 bekannt. In dem bekannten Verfahren wird zunächst eine Legierung auf der Basis von Neodym, Eisen und Bor erschmolzen. Die 15 Legierung wird zu einem Schmelzblock abgegossen, der anschließend zu Pulver zerkleinert wird. Aus dem Pulver werden im Magnetfeld Rohlinge gepreßt, die schließlich gesintert werden.

20

Für viele Anwendungen von Nd-Fe-B-Dauermagneten, insbesondere in Motoren und Antrieben aller Art, ist die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} bei 150°C entscheidend für die Qualität des Dauermagneten. Bei geringer Gegenfeldbelastung muß die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} bei 150°C mindestens 4,5 kOe, besser mehr als 25 5 kOe betragen. Bei hoher Gegenfeldbelastung sind sogar Werte oberhalb von 13 kOe bei 150°C gefordert. Neben der hohen Koerzitivfeldstärke H_{CJ} sollen solche Magnete auch eine möglichst hohe Remanenz B_r aufweisen. Beispielsweise soll die Remanenz B_r von Nd-Fe-B-Dauermagneten, die bei 150°C eine Koerzitivfeldstärke H_{CJ} im Bereich von 4,5 kOe aufweisen, bei 30 Raumtemperatur mindestens 1,29 T, besser jedoch mehr als 1,35 T betragen.

35

Für Motoranwendungen ist außerdem gefordert, daß der reversible Temperaturkoeffizient der Remanenz TK (B_r) im Temperaturbereich von 20°C bis 150°C besser als -0,11 %/K sein soll. Zusätzlich sollen derartige Dauermagnete eine möglichst gute

Korrosionsbeständigkeit aufweisen, um aufwendige und teuere Beschichtungen überflüssig zu machen. So wird zum Beispiel gefordert, daß der Masseverlust von unbeschichteten Magneten im sogenannten HAST-Test nach zehn Tagen kleiner als 1 mg/cm^2 sein soll. Im HAST-Test werden die Dauermagnete bei einer Temperatur von 130°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 95 % einem Druck von 2,7 bar ausgesetzt.

Diese Anforderungen werden von herkömmlichen Nd-Fe-B-Dauer-
10 magneten nicht erfüllt.

Ausgehend von diesem Stand der Technik liegt der Erfindung die Aufgabe zugrunde, eine Legierung für Dauermagnete auf der Basis wenigstens einer Seltenen Erde, wenigstens eines Übergangsmetalls und Bor zu schaffen, die bei gleicher Remanenz B_r eine höhere Koerzitivfeldstärke H_{CJ} als herkömmliche Legierungen aufweist sowie über einen niedrigen Temperaturkoeffizient der Remanenz verfügt und korrosionsbeständig ist.

20 Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß durch eine Legierung mit den im Anspruch 1 angegebenen Merkmalen gelöst.

Herkömmliche Nd-Fe-B-Legierungen bestehen im wesentlichen aus drei Phasen: der hartmagnetischen φ -Phase mit der Zusammensetzung $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$, der unmagnetischen η -Phase mit der Zusammensetzung $\text{Nd}_{1,1}\text{Fe}_4\text{B}_4$ und der unmagnetischen Zwickelphase die nahezu ausschließlich aus Nd besteht. Die Nd-reiche Zwickelphase trennt die Körner der φ -Phase magnetisch voneinander, was eine hohe Koerzitivfeldstärke H_{CJ} zur Folge hat. Bei zu geringen Konzentrationen an B besteht jedoch die Gefahr, daß sich an Stelle der unmagnetischen η -Phase die weichmagnetische $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase bildet, wodurch sich die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} erheblich reduziert. Anders als bei herkömmlichen Nd-Fe-B-Legierungen entsteht bei den erfindungsgemäß hergestellten Legierungen beim Unterschreiten eines kritischen B-Gehalts an Stelle der unmagnetischen η -Phase nicht die für die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} schädliche $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase, sondern

zunächst eine Reihe von unmagnetischen Ga-haltigen Phasen. Diese Ga-haltigen Phasen tragen im Gegensatz zur ferromagnetischen Nd_2Fe_{17} -Phase zur magnetischen Entkopplung der Körner der φ -Phase bei, wodurch sich die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} und auch die Temperaturabhängigkeit der Legierung verbessert.

Der Erfindung liegt ferner die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur Herstellung von Dauermagneten aus dieser Legierung anzugeben.

10

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß durch ein Verfahren mit den im Anspruch 6 angegebenen Merkmalen gelöst.

Bei geschickter Temperaturführung können besonders hohe Werte 15 für die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} erzielt werden. Hervorzuheben ist dabei, daß insbesondere bei schneller Abkühlung besonders gute Werte für die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} erreicht werden. Eine schnelle Abkühlung ist jedoch gleichbedeutend mit einer effektiven Nutzung der Öfen. Dagegen können bei langsamer 20 Kühlung auch große Dauermagnetteile hergestellt werden, ohne daß sich in den Dauermagnetteilen Abkühlrisse bilden und sich die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} wesentlich verringert.

Nachfolgend wird die Erfindung näher anhand der beigefügten 25 Zeichnung erläutert. Es zeigen:

Figur 1 einen Ausschnitt aus einem Phasendiagramm für Nd-Fe-B-Dauermagnete;

30 Figur 2 eine Darstellung des Zusammenhangs zwischen Remanenz B_r und Koerzitivfeldstärke H_{CJ} für verschiedene Nd-Fe-B-Dauermagnete;

35 Figur 3 ein Diagramm mit der Temperaturführung beim Sintern und Anlassen;

Figur 4 ein weiteres Diagramm mit einer weiteren möglichen Temperaturführung beim Sintern und Anlassen;

5 Figur 5 eine Darstellung, aus der die Abhängigkeit der Koer-
zitativfeldstärke H_{CJ} von der Art der Temperaturfüh-
rung beim Sintern und Anlassen ersichtlich ist;

10 Figur 6 ein Diagramm, aus dem die Abhängigkeit der Remanenz
 B_r vom effektiven Gehalt an Bor und Seltenen Erden
hervorgeht;

15 Figur 7 eine Darstellung, die die Abhängigkeit der Koerzi-
tativfeldstärke H_{CJ} bei 150°C vom effektiven Gehalt an
Bor und Seltenen Erden bei langsamem Abkühlen zeigt;

20 Figur 8 eine Darstellung, die die Abhängigkeit des Tempera-
turkoeffizienten der Koerzitativfeldstärke $TK(H_{CJ})$ vom
effektiven Gehalt an Bor und Seltenen Erden bei
langsamem Abkühlen darstellt;

25 Figur 9 eine Darstellung, die die Abhängigkeit der Koerzi-
tativfeldstärke H_{CJ} bei 150°C vom effektiven Gehalt an
Bor und Seltenen Erden beim schnellen Abkühlen
zeigt; und

30 Figur 10 eine Darstellung, die die Abhängigkeit des Tempera-
turkoeffizienten $TK(H_{CJ})$ der Koerzitativfeldstärke H_{CJ}
vom effektiven Gehalt an Bor und Seltenen Erden bei
schneller Kühlung darstellt.

35 Figur 1 ist ein Phasendiagramm, das die Zusammensetzung einer
Nd-Fe-B-Legierung in Abhängigkeit vom effektiven Gehalt an
Bor und Seltenen Erden zeigt. Das für die Anwendung als Dau-
ermagnet geeignete Gefüge tritt vor allem innerhalb eines
Phasendreiecks 1 auf. Innerhalb dieses Phasendreiecks 1 be-
steht die Legierung aus hartmagnetischen Körnern der φ -Phase
mit der Zusammensetzung $Nd_2Fe_{14}B$, sowie aus Körnern der unma-

gnetischen η -Phase mit der Zusammensetzung $Nd_{1,1}Fe_4B_4$ und der unmagnetischen Zwickelphase, die nahezu ausschließlich aus Nd besteht. Die Nd-reiche Zwickelphase trennt die Körner der ϕ -Phase magnetisch voreinander, was notwendig ist, um eine hohe 5 Koerzitivfeldstärke H_{cJ} zu erzielen.

Um beurteilen zu können, ob eine bestimmte Zusammensetzung der Legierung innerhalb oder außerhalb des Phasendreiecks 1 liegt, ist es zunächst notwendig, den Gehalt an Seltenen Erden und Bor bezüglich der Verunreinigungen zu korrigieren, da ein Teil des Nd in der Form von Nd-Oxiden, Nd-Nickelkarbiden und Nd-Nitriden gebunden ist. Der effektive Gehalt an Seltenen Erden $[SE]_{eff}$ und der effektive Gehalt an Bor $[B]_{eff}$ ergibt sich aus folgenden Formeln:

15

$$[SE]_{eff} = ([SE] - [\Delta SE])_f, \\ [B]_{eff} = [B]_f,$$

20 wobei $[SE]$ und $[B]$ jeweils die Gewichtsanteile an Seltenen Erden und Bor sind. $[\Delta SE]$ ist der Anteil an Seltenen Erden, der in den Verbindungen Nd_2O_3 , Nd_2CO und NdN gebunden ist. f ist ein Normierungsfaktor:

$$25 [\Delta SE] = 5,993 [O] + 16,05 [C] + 10,30 [N] \\ f = 100 / ([100 - [\Delta SE] - [O] - [C] - [N]]).$$

30

$[O]$, $[C]$ und $[N]$ sind dabei die Gewichtsanteile von O, C und N. In den genannten Formeln sind alle Angaben Konzentrationsangaben in Gew.-%.

35

Der effektive Gehalt an Seltenen Erden und Bor beeinflusst den Aufbau des Gefüges. Im Punkt η des Phasendreiecks 1 liegt das Gefüge nahezu ausschließlich in Form der η -Phase vor. Im Punkt ϕ des Phasendreiecks 1 ist die Legierung in der ϕ -Phase, während sie im Punkt SE im wesentlichen aus der Nd-reichen Zwickelphase besteht. Der Anteil an der η -Phase kann im Prinzip beliebig klein sein. Bei einem zu geringen Bor-Gehalt be-

steht jedoch die Gefahr, daß sich an Stelle der unmagnetischen η -Phase die weichmagnetische $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase bildet, wodurch sich die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} erheblich reduziert. Die Zusammensetzung der Nd-Fe-B-Dauermagnete wird demzufolge 5 herkömmlicherweise immer so gewählt, daß sie innerhalb des Phasendreiecks 1, insbesondere oberhalb der Konode 2 liegt. Die Werte für die jeweiligen Punkte im Phasendiagramm aus Figur 1 sind in Tabelle 1 eingetragen.

| | SE in Gew.% | B-Gehalt in Gew.% | Fe-Gehalt in Gew.% |
|-----------------------------|-------------|-------------------|--------------------|
| φ | 26,68 | 1,000 | Rest |
| η | 37,3 | 10,2 | Rest |
| Nd-reich | 98 | 0 | Rest |
| $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ | 23,3 | 0 | Rest |

10

Tabelle 1

Für viele Anwendungen von Nd-Fe-B-Dauermagneten, insbesondere 15 in Motoren und Antrieben aller Art, ist nun aber die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} bei 150°C wesentlich. Die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} der verwendeten Nd-Fe-B-Dauermagnete soll bei geringerer Gegenfeldbelastung wenigstens 4,5 kOe, besser wenigstens 5 kOe betragen. Bei höherer Gegenfeldbelastung sind noch höhere Werte oberhalb von 13 kOe bei 150°C gefordert. 20 Neben einer hohen Koerzitivfeldstärke H_{CJ} bei einer Temperatur von 150°C sollen derartige Nd-Fe-B-Dauermagnete auch eine möglichst hohe Remanenz B_r haben.

Insbesondere für die Anwendung in Motoren wird verlangt, daß 25 der reversible Temperaturkoeffizient der Remanenz TK (B_r) im Temperaturbereich von 20°C bis 150°C besser als $-0,11\text{ \%}/\text{K}$ sein soll.

Zusätzlich sollen die Nd-Fe-B-Dauermagnete eine möglichst gute 30 Korrosionsbeständigkeit haben, um aufwendige und teuere Beschichtungen überflüssig zu machen.

Es wurde herausgefunden, daß sich durch den Zusatz von Gallium zur Legierung unterhalb der Konode 2 ein Phasengebiet 3 ausbildet, in dem neben der hartmagnetischen φ -Phase und neben der unmagnetischen Nd-reichen Phase weitere Ga-haltige Phasen vorliegen. Eine Konode 4 trennt das Phasengebiet 3 von einem weiteren Phasengebiet 5, in dem die $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase überwiegt. Überraschenderweise ist es nun möglich, mit den Legierungen im Phasengebiet 3 die an Nd-Fe-B-Dauermagnete beim Einsatz in Motoren gestellten Anforderungen zu erfüllen. Diese Verbesserung läßt sich durch folgendes metallurgisches Modell erklären: bei herkömmlichen Nd-Fe-B-Dauermagneten entsteht die weichmagnetische, für die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} schädliche $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase, wenn der durch die Grenzlinie 2 veranschaulichte kritische Bor-Gehalt unterschritten wird. Beim Zusatz von Gallium, Kobalt und Kupfer zur Nd-Fe-B-Legierung entsteht beim Unterschreiten der Grenzlinie 2 anstelle der unmagnetischen η -Phase nicht die $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase, sondern zunächst eine Reihe von unmagnetischen Ga-haltigen Phasen. Diese Ga-haltigen Phasen tragen im Gegensatz zum $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase zur magnetischen Entkopplung der Körner aus der φ -Phase bei. Dadurch verbessert sich die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} und auch deren Temperaturkoeffizient. Eine weitere Reduktion des Bor-Gehalts führt schließlich dann doch zur Bildung der $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase im Phasengebiet 5 und damit zum Zusammenbruch der Koerzitivfeldstärke H_{CJ} .

Neben Gallium können auch Co und Cu der Legierung mit vorteilhafter Wirkung hinzugesetzt werden.

Durch Zulegieren von Co läßt sich beispielsweise der Temperaturkoeffizient der Remanenz TK (B_r) von Nd-Fe-B-Dauermagneten verbessern. Insbesondere wird der Temperaturkoeffizient der Remanenz TK (B_r) durch Zulegieren von 3 Gew.% Co von $-0,12\text{ \%}/\text{K}$ auf etwa $-0,105\text{ \%}/\text{K}$ verbessert. Wenn jedoch nur Co zulegiert wird, führt dies zur Bildung einer weichmagnetischen SECo_2 -Laves-Phase, wodurch die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} beträchtlich reduziert wird. Die Bildung dieser schädlichen

Laves-Phase lässt sich durch gleichzeitiges Zulegieren von Cu verhindern. Als günstig erwiesen hat sich der Zusatz von 0,05 bis 0,2 Gew.% Cu. Außerdem können Cu-haltige Nd-Fe-B-Dauer-
5 magnete nach einer im Herstellungsprozeß durchgeföhrten Wärmebehandlung langsam geköhlt werden, ohne daß die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} wesentlich reduziert wird.

Die Beständigkeit der Nd-Fe-B-Dauermagnete gegen die Korrosion durch Wasserdampf wird durch zusätzliches Zulegieren von
10 Co, Cu und Ga im Vergleich zu herkömmlichen Nd-Fe-B-Dauermagnete um etwa drei Größenordnungen verbessert. Dabei wird eine besonders reaktive Nd-reiche Zwickelphase weitgehend durch chemisch edlere Co-, Cu- und Ga-haltige Phasen ersetzt.

15 Durch diese Maßnahmen ergeben sich Nd-Fe-B-Dauermagnete, die im sogenannten HAST-Test nach zehn Tagen einen auf die Oberfläche des Nd-Fe-B-Dauermagneten bezogenen Masseverlust von $< 1 \text{ mg/cm}^2$ aufweisen. Im sogenannten HAST-Test werden die Nd-
20 Fe-B-Dauermagnete bei einer Temperatur von 130 °C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 95 % einem Druck von 2,7 bar ausgesetzt.

Außerdem ist es möglich, die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} zu erhöhen, indem ein Teil des Nd durch Dy, Tb oder Ho ersetzt wird,
25 ohne daß das Verhältnis von Gehalt an Seltenen Erden zum Gehalt an Fe und B wesentlich verändert wird. Da sich das magnetische Moment von Dy, Tb und Ho im Gegensatz zu Nd antiparallel zum magnetischen Moment von Fe ausrichtet, führt dies zwangsläufig zu einer Reduktion der erreichbaren Remanenz B_r . Dies bedeutet, daß die Zunahme der Koerzitivfeldstärke H_{CJ} mit einer Abnahme der Remanenz B_r verbunden ist.

Dieser Zusammenhang ist in Figur 2 und der zugehörigen Tabelle 2 dargestellt.

| Legierung | SE, effektiv | B, effektiv | Dy | Co | Cu | Ga | H _{CJ} (20°C, kOe) | H _{CJ} (150°C, kOe) | B _r (20°C,T) |
|-----------|--------------|-------------|-----|----|------|------|-----------------------------|------------------------------|-------------------------|
| A 1 | 29,2 | 0,98 | 3 | - | - | - | 17 | 3,5 | 1,33 |
| A 2 | 29,5 | 0,98 | 4,6 | - | - | - | 21 | 5 | 1,28 |
| A 3 | 29,6 | 0,98 | 6,5 | - | - | - | 26 | 8 | 1,22 |
| A 4 | 29,7 | 0,98 | 8,6 | - | - | - | 31 | 11 | 1,16 |
| B 1 | 29,3 | 0,94 | 3 | 3 | 0,15 | 0,23 | 18 | 5,3 | 1,35 |
| B 2 | 29,5 | 0,94 | 5,5 | 3 | 0,15 | 0,23 | 23 | 8 | 1,28 |
| B 3 | 30 | 0,93 | 9,5 | 3 | 0,15 | 0,23 | 31 | 13 | 1,18 |

Tabelle 2

5 Die Legierungen A1 bis A4 stellen herkömmliche Legierungen mit den in der Tabelle 2 angegebenen Zusammensetzungen dar. Bei den Legierungen B1 bis B3 handelt es sich um Legierungen gemäß der Erfindung. Anhand von Figur 2 wird deutlich, daß mit zunehmendem Gehalt an Dy zwar die Koerzitivfeldstärke zunimmt, aber die Remanenz abnimmt.

10 Außerdem läßt Figur 2 erkennen, daß die Legierungen, denen Co, Cu und Ga zugesetzt worden ist, bei gleicher Remanenz B_r im Vergleich zu herkömmlichen Legierungen eine höhere Koerzitivfeldstärke H_{CJ} aufweisen. Letzteres gilt nicht nur für Raumtemperatur, sondern insbesondere auch bei 150°C.

15 Nd-Fe-B-Legierungen mit einem Gehalt von Dy im Bereich 3 Gew.% sind nun systematisch untersucht worden. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in den Tabellen 3 und 4 aufgeführt. Im Rahmen dieser Untersuchungen hat sich herausgestellt, daß die magnetischen Eigenschaften der Nd-Fe-B-Dauermagnete wesentlich von der Temperaturführung während der im Rahmen des Herstellprozesses durchgeführten Wärmebehandlungen abhängen.

20 Nd-Fe-B-Legierungen werden üblicherweise dadurch hergestellt, daß zunächst die Legierung mit den gewünschten Zusammensetzungen erschmolzen und zu einem Schmelzblock abgegossen wird.

Der Schmelzblock wird dann zu Pulver zerkleinert und gegebenenfalls zur Korrektur der Endzusammensetzung mit anderen Pulvern gemischt. Das fertige Pulver wird dann in einem Magnetfeld ausgerichtet und parallel oder senkrecht zur Magnetfeldrichtung oder auch durch isostatischen Druck zu Grünlingen verpreßt. Die Grünlinge werden anschließend, wie in Figur 3 und 4 dargestellt, einem Sintervorgang 6 unterzogen. Bei dem in Figur 3 dargestellten Beispiel der Temperaturführung wird nach dem Sintervorgang 6 eine Wärmebehandlung 7 durchgeführt. Die Abkühlung von der Anlaßtemperatur kann langsam, wie in Figur 3, oder schnell, wie in Figur 4, erfolgen.

In Figur 5 ist die Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke H_{CJ} in Abhängigkeit vom effektiven Bor-Gehalt und der Abkühlgeschwindigkeit $\Delta T/\Delta t$ dargestellt. Aus Figur 5 geht hervor, daß eine hohe Koerzitivfeldstärke H_{CJ} bei einem hohen Bor-Gehalt nur in einem engen Temperaturfenster zwischen 440 und 500°C erreicht wird. Bei niedrigem effektivem Bor-Gehalt dagegen können hohe Koerzitivfeldstärken H_{CJ} in einem größeren Temperaturfenster erzielt werden. So nimmt die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} mit abnehmendem Bor-Gehalt um nahezu 3 kOe zu. Durch eine schnelle Abkühlung unterhalb von 750°C im Rahmen des Sintervorgangs und durch schnelles Abkühlen von der Anlaßtemperatur lässt sich die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} noch einmal um etwa 1 kOe erhöhen.

Von besonderem Interesse sind die hohen Koerzitivfeldstärken H_{CJ} , die sich trotz langsamer Kühlung bei einem niedrigen effektiven Gehalt an Bor von 0,92 Gew.% ergeben. Dies ist insbesondere dann von Vorteil, wenn Nd-Fe-B-Dauermagnete mit großen Querschnittsflächen hergestellt werden sollen. Denn für derartige Teile sind während der Sinterung und der Wärmebehandlung nur geringe Abkühlgeschwindigkeiten $\Delta T/\Delta t < 10$ K/min zulässig, um Abkühlrisse zu vermeiden. Diese geringen Abkühlgeschwindigkeiten dürfen jedoch nur zu einer geringfügigen Verschlechterung der magnetischen Eigenschaften führen. Gemäß Figur 5 ist es durchaus möglich, Nd-Fe-B-Dauermagnete

nach der Wärmebehandlung langsam mit Abkühlgeschwindigkeiten im Bereich von 1 bis 2 K/min ohne wesentliche Beeinträchtigung der magnetischen Eigenschaften abzukühlen, sofern nur die Nd-Fe-B-Legierung borarm ist. Unter einer borarmen Nd-Fe-B-Legierung ist dabei eine Legierung zu verstehen, deren effektiver Bor-Gehalt unterhalb der Konode 2 liegt.

In den Tabellen 3 und 4 sind Zusammensetzungen und magnetischen Eigenschaften von isostatisch gepressten Nd-Fe-B-Dauermagneten mit unterschiedlichem effektivem Gehalt an Seltenen Erden und Bor aufgelistet. Die fett gedruckten Angaben beziehen sich auf die borarmen Legierungen gemäß der Erfindung. Alle Nd-Fe-B-Dauermagnete sind nach dem gängigen pulvermetallurgischen Verfahren hergestellt und bei etwa 1060°C auf eine Dichte > 7,6 g/cm³ gesintert worden. Die in Tabelle 3 aufgeführten Nd-Fe-B-Dauermagnete sind von Sintertemperatur langsam mit etwa 1 bis 2 K/min auf Raumtemperatur abgekühlt worden. Danach sind diese bei einer Temperatur von 440°C bis 560°C für ein bis zwei Stunden getempert worden und wieder langsam mit etwa 1 bis 2 K/min auf Raumtemperatur abgekühlt worden. Die in Tabelle 4 aufgelisteten Magnete sind von Sintertemperatur zunächst langsam mit etwa 2 K/min auf etwa 750°C und nach einer Haltezeit von etwa 1 Stunde mit etwa 30 bis 50 K/min schnell auf Raumtemperatur abgeschreckt worden. Diese Nd-Fe-B-Dauermagnete wurden nach einer anschließenden Temperung bei 470 bis 530°C wiederum schnell mit etwa 30 bis 50 K/min auf Raumtemperatur abgekühlt.

In Figur 6 sind die Werte für die Remanenz B_r für die Legierungen aus Tabelle 3 in Abhängigkeit vom effektiven Gehalt an Bor und Seltenen Erden eingetragen. Zwei Niveaulinien verdeutlichen die Tendenz der zunehmenden Remanenz B_r bei abnehmendem effektivem Seltenen-Erden-Gehalt und zunehmendem effektivem Bor-Gehalt. Bei einem effektiven Seltenen-Erden-Gehalt von < 30 Gew.% und einem effektiven Bor-Gehalt von > 0,93 Gew.% wird für isostatisch gepresste Nd-Fe-B-Dauermagnete eine Remanenz B_r von mehr als 1,35 T erreicht. Bezüg-

lich des Bor-Gehalts geht die Remanenz B_r knapp unterhalb der Grenzlinie 2 zum Phasendreieck 1 durch ein Maximum.

5 In Figur 7 ist die Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke bei 150°C für die langsam gekühlten Nd-Fe-B-Dauermagnete aus Tabelle 3 dargestellt. Aus Figur 7 kann man entnehmen, daß sich mit abnehmendem effektivem Bor-Gehalt die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} bei 150°C erhöht. Gleiches gilt auch für die Koerzitivfeldstärke bei 20°C.

10

Figur 8 zeigt schließlich die Abhängigkeit des Temperaturkoeffizienten von H_{CJ} für langsam gekühlte Nd-Fe-B-Dauermagnete in Abhängigkeit vom effektiven Gehalt an Seltenen Erden und Bor. Auch hier ergeben sich mit abnehmendem effektivem Bor-Gehalt zunehmend bessere Werte für die Temperaturkoeffizienten. Zusammen mit der ansteigenden Koerzitivfeldstärke H_{CJ} führt dies für langsam gekühlte Magnete zu einer Erhöhung der Koerzitivfeldstärke H_{CJ} bei 150°C von unter 4,5 kOe auf Werte bis zu über 5,5 kOe. Diese besonders hohen Werte für die Koerzitivfeldstärke H_{CJ} ergeben sich insbesondere für einen Seltenen-Erden-Gehalt $[SE]_{eff}$ von mehr als 28,9 Gew.%, wobei für den effektiven Bor-Gehalt die Beziehung gilt:

$$1,814 - 0,0303[SE]_{eff} \leq [B]_{eff} \leq 1,396 - 0,01491[SE]_{eff}$$

25

Das gleiche Bild zeigt sich für Nd-Fe-B-Dauermagnete, die von etwa 750°C und von Anlaßtemperatur schnell abgekühlt wurden. Gemäß Figur 9 und 10 werden allerdings sowohl für die Temperaturabhängigkeit als auch für die Absolutwerte im Vergleich zu den langsam gekühlten Nd-Fe-B-Dauermagneten etwas bessere Werte erreicht. Dadurch erweitert sich der Bereich, in dem die geforderten Eigenschaften, nämlich eine Remanenz $B_r > 1,35$ T bei Raumtemperatur und eine Koerzitivfeldstärke $H_{CJ} > 5$ kOe bei 150°C, erreicht werden.

35

Besonders hohe Werte für die Koerzitivfeldstärke bei 150°C ergeben sich für einen effektiven Gehalt an Seltenen Erden

13

oberhalb von 28,5 Gew.%, insbesondere 28,7 Gew.%, wobei für den effektiven Bor-Gehalt die Beziehung gilt:

5 $1,814 - 0,0303 [SE]_{eff} \leq [B]_{eff} \leq 1,478 - 0,01801 [SE]_{eff}$

Abschließend sei angemerkt, daß neben Nd auch Pr verwendet werden kann, ohne daß die magnetischen Eigenschaften der Dauermagnete beeinträchtigt werden.

| Zusammensetzung in Gew.% | | | | | | Anlaß- temp. (°C) | B _r (20°C) | (BH) max (MGOe) | H _{CJ} (20°C) (kOe) | H _{CJ} (150°C) (kOe) | TK(H _{CJ}) (20–150°C) (%/K) |
|--------------------------|-------------|-----|-----|------|------|-------------------------|--------------------------|--------------------|------------------------------------|-------------------------------------|---|
| SE, effektiv | B, effektiv | Dy | Co | Cu | Ga | (°C) | (T) | (MGOe) | (kOe) | (kOe) | (%/K) |
| 28,1 | 0,99 | 2,8 | 3,1 | 0,15 | 0,22 | 470 | 1,386 | 46,6 | 16,16 | 4 | -0,579 |
| 28,1 | 0,99 | 2,8 | 3,1 | 0,15 | 0,22 | 500 | 1,372 | 45,7 | 15,06 | | -0,570 |
| 28,1 | 0,99 | 2,8 | 3,1 | 0,15 | 0,22 | 530 | 1,382 | 46,4 | 15,57 | | |
| | | | | | | | | | | | |
| 28,9 | 0,98 | 2,8 | 3 | 0,13 | 0,2 | 470 | 1,383 | 46,4 | 16,88 | 4,08 | -0,583 |
| 28,9 | 0,98 | 2,8 | 3 | 0,13 | 0,2 | 500 | 1,378 | 46,1 | 17,24 | 4,39 | -0,573 |
| 28,9 | 0,98 | 2,8 | 3 | 0,13 | 0,2 | 530 | 1,391 | 47,0 | 16,4 | 3,84 | -0,589 |
| | | | | | | | | | | | |
| 29,6 | 0,97 | 2,8 | 2,9 | 0,1 | 0,18 | 470 | 1,376 | 46,0 | 16,27 | 4,02 | -0,579 |
| 29,6 | 0,97 | 2,8 | 2,9 | 0,1 | 0,18 | 500 | 1,36 | 44,9 | 16,63 | 4,11 | -0,579 |
| 29,6 | 0,97 | 2,8 | 2,9 | 0,1 | 0,18 | 530 | 1,374 | 45,8 | 9,96 | | |
| | | | | | | | | | | | |
| 28,7 | 0,94 | 2,9 | 3,1 | 0,17 | 0,22 | 500 | 1,374 | 45,8 | 15,69 | 4,42 | -0,553 |
| 28,65 | 0,95 | 2,9 | 3,1 | 0,16 | 0,22 | 500 | 1,356 | 44,6 | 16,43 | 4,51 | -0,558 |
| 28,6 | 0,96 | 3 | 3,2 | 0,16 | 0,22 | 500 | 1,375 | 45,9 | 16,89 | 4,59 | -0,560 |
| 28,55 | 0,97 | 3 | 3,2 | 0,15 | 0,22 | 500 | 1,375 | 45,9 | 17,58 | 4,42 | -0,576 |
| 28,5 | 0,98 | 3 | 3,2 | 0,15 | 0,21 | 500 | 1,382 | 46,4 | 17,15 | 4,42 | -0,571 |
| | | | | | | | | | | | |
| 29,8 | 0,92 | 3,1 | 3,0 | 0,16 | 0,22 | 500 | 1,341 | 43,6 | 18,08 | 5,36 | -0,541 |
| 29,8 | 0,93 | 3,1 | 3,0 | 0,15 | 0,22 | 500 | 1,352 | 44,4 | 18,24 | 5,26 | -0,547 |
| 29,8 | 0,95 | 3,1 | 3,0 | 0,15 | 0,22 | 500 | 1,355 | 44,6 | 18,11 | 5,04 | -0,555 |
| 29,8 | 0,96 | 3,1 | 3,0 | 0,14 | 0,22 | 500 | 1,363 | 45,1 | 17,34 | 4,49 | -0,570 |
| 29,8 | 0,98 | 3,1 | 3,0 | 0,14 | 0,22 | 500 | 1,348 | 44,1 | 17,42 | 4,41 | -0,574 |
| | | | | | | | | | | | |
| 29,9 | 0,94 | 3,3 | 3,1 | 0,14 | 0,21 | 440 | 1,369 | 45,5 | 15,95 | 3,79 | -0,586 |
| 29,9 | 0,94 | 3,3 | 3,1 | 0,14 | 0,21 | 470 | 1,342 | 43,7 | 17,71 | 4,67 | -0,566 |
| 29,9 | 0,94 | 3,3 | 3,1 | 0,14 | 0,21 | 500 | 1,353 | 44,4 | 17,79 | 4,6 | -0,570 |
| 29,9 | 0,94 | 3,3 | 3,1 | 0,14 | 0,21 | 530 | 1,352 | 44,4 | 10,62 | | |
| 29,9 | 0,94 | 3,3 | 3,1 | 0,14 | 0,21 | 560 | 1,311 | 41,7 | 9,55 | | |
| | | | | | | | | | | | |
| 29,2 | 0,93 | 2,9 | 3 | 0,19 | 0,25 | 470 | 1,364 | 45,2 | 16,56 | 4,67 | -0,552 |
| 29,2 | 0,93 | 2,9 | 3 | 0,19 | 0,25 | 500 | 1,351 | 44,3 | 17 | 4,95 | -0,545 |
| 29,2 | 0,93 | 2,9 | 3 | 0,19 | 0,25 | 530 | 1,366 | 45,3 | 16,38 | 5 | -0,534 |
| | | | | | | | | | | | |
| 29,5 | 0,93 | 2,9 | 3 | 0,17 | 0,23 | 470 | 1,347 | 44,0 | 17,57 | 5,12 | -0,545 |
| 29,5 | 0,93 | 2,9 | 3 | 0,17 | 0,23 | 500 | 1,331 | 43,0 | 18,21 | 5,39 | -0,542 |
| 29,5 | 0,93 | 2,9 | 3 | 0,17 | 0,23 | 530 | 1,344 | 43,8 | 17,97 | 5,42 | -0,537 |
| | | | | | | | | | | | |
| 29,9 | 0,92 | 2,9 | 3 | 0,16 | 0,22 | 470 | 1,341 | 43,6 | 18,62 | 5,42 | -0,545 |
| 29,9 | 0,92 | 2,9 | 3 | 0,16 | 0,22 | 500 | 1,331 | 43,0 | 19,08 | 5,71 | -0,539 |
| 29,9 | 0,92 | 2,9 | 3 | 0,16 | 0,22 | 530 | 1,307 | 41,5 | 18,56 | 5,61 | -0,537 |

Tabelle 3

| Zusammensetzung in Gew.% | | | | | | Anlaß-temp. | B _r (20°C) | (BH) _{max} | H _{CJ} (20°C) | H _{CJ} (150°C) | TK(H _{CJ}) (20-150°C) |
|--------------------------|-------------|-----|-----|------|------|-------------|--------------------------|---------------------|---------------------------|----------------------------|------------------------------------|
| SE, effektiv | B, effektiv | Dy | Co | Cu | Ga | (°C) | (T) | (MGOe) | (kOe) | (kOe) | (%/K) |
| 28,7 | 0,94 | 2,9 | 3,1 | 0,17 | 0,22 | 500 | 1,37 | 45,6 | 17,16 | 4,99 | -0,546 |
| 28,65 | 0,95 | 2,9 | 3,1 | 0,16 | 0,22 | 500 | 1,341 | 43,6 | 18,02 | 5,15 | -0,549 |
| 28,6 | 0,96 | 3 | 3,2 | 0,16 | 0,22 | 500 | 1,374 | 45,8 | 17,43 | 4,9 | -0,553 |
| 28,55 | 0,97 | 3 | 3,2 | 0,15 | 0,22 | 500 | 1,372 | 45,7 | 16,33 | 4,61 | -0,552 |
| 28,5 | 0,98 | 3 | 3,2 | 0,15 | 0,21 | 500 | 1,362 | 45,0 | 16,69 | 4,79 | -0,551 |
| 29,8 | 0,92 | 3,1 | 3 | 0,16 | 0,22 | 500 | 1,343 | 43,8 | 18,3 | 5,59 | -0,534 |
| 29,8 | 0,93 | 3,1 | 3 | 0,15 | 0,22 | 500 | 1,351 | 44,3 | 18,46 | 5,5 | -0,539 |
| 29,8 | 0,95 | 3,1 | 3 | 0,15 | 0,22 | 500 | 1,35 | 44,2 | 18,17 | 5,18 | -0,550 |
| 29,8 | 0,96 | 3,1 | 3 | 0,14 | 0,22 | 500 | 1,354 | 44,5 | 16,87 | 4,71 | -0,554 |
| 29,8 | 0,98 | 3,1 | 3 | 0,14 | 0,22 | 500 | 1,344 | 43,8 | 16,91 | 4,78 | -0,552 |
| 28,8 | 0,95 | 3 | 2,8 | 0,14 | 0,26 | 500 | 1,359 | 44,8 | 18,65 | 5,66 | -0,536 |
| 28,8 | 0,95 | 3 | 2,8 | 0,14 | 0,26 | 530 | 1,361 | 45,0 | 18,22 | 5,67 | -0,530 |
| 29,2 | 0,93 | 2,9 | 3 | 0,19 | 0,25 | 470 | 1,354 | 44,5 | 18,61 | 5,65 | -0,536 |
| 29,2 | 0,93 | 2,9 | 3 | 0,19 | 0,25 | 500 | 1,343 | 43,8 | 18,87 | 5,67 | -0,538 |
| 29,2 | 0,93 | 2,9 | 3,0 | 0,19 | 0,25 | 530 | 1,355 | 44,6 | 18,73 | 5,82 | -0,530 |
| 29,5 | 0,93 | 2,9 | 3,0 | 0,17 | 0,23 | 470 | 1,342 | 43,7 | 19,71 | 5,83 | -0,542 |
| 29,5 | 0,93 | 2,9 | 3,0 | 0,17 | 0,23 | 500 | 1,323 | 42,5 | 19,56 | 5,92 | -0,536 |
| 29,5 | 0,93 | 2,9 | 3,0 | 0,17 | 0,23 | 530 | 1,329 | 42,9 | 19,9 | 6,09 | -0,534 |
| 29,9 | 0,92 | 2,9 | 3 | 0,16 | 0,22 | 470 | 1,337 | 43,4 | 20,3 | 6,09 | -0,538 |
| 29,9 | 0,92 | 2,9 | 3 | 0,16 | 0,22 | 500 | 1,343 | 43,8 | 19,8 | 5,9 | -0,539 |
| 29,9 | 0,92 | 2,9 | 3 | 0,16 | 0,22 | 530 | 1,335 | 43,3 | 20 | 6,09 | -0,535 |

Tabelle 4

Patentansprüche

1. Legierung aus wenigstens einer Seltenen Erde einschließlich Yttrium, aus Eisen, aus den Elementen B, Co, Cu, Ga und 5 Al sowie aus herstellungsbedingten Verunreinigungen, wobei für die effektive Seltenen-Erde-Gehalt $[SE]_{eff}$, den effektiven Bor-Gehalt $[B]_{eff}$, den gemeinsamen Gehalt an Dy, Tb und Ho $[Dy + Tb + Ho]$, den Kobalt-Gehalt $[Co]$, den Kupfer-Gehalt $[Cu]$ und den Gallium-Gehalt $[Ga]$ sowie den Aluminium-Gehalt 10 $[Al]$ die Beziehungen gelten:

$$26,9 \text{ Gew. \%} \leq [SE]_{eff} \leq 33 \text{ Gew. \%}$$

$$2,185 - 0,0442 [SE]_{eff} \leq [B]_{eff} \leq 1,363 - 0,0136 [SE]_{eff}$$
$$[Dy + Tb + Ho] \leq 17 \text{ Gew. \%}$$

15 $0,5 \text{ Gew. \%} \leq [Co] \leq 5 \text{ Gew. \%}$

$$0,05 \text{ Gew. \%} \leq [Cu] \leq 0,3 \text{ Gew. \%}$$

$$0,05 \text{ Gew. \%} \leq [Ga] \leq 0,35 \text{ Gew. \%}$$

$$0,02 \text{ Gew. \%} \leq [Al] \leq 0,3 \text{ Gew. \%}$$

20 2. Legierung nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
daß für den effektiven Bor-Gehalt $[B]_{eff}$ die Beziehung gilt:

$$1,814 - 0,0303 [SE]_{eff} \leq [B]_{eff} \leq 1,363 - 0,0136 [SE]_{eff}.$$

25 3. Legierung nach Anspruch 1 oder 2,
dadurch gekennzeichnet,
daß der Seltenen-Erden-Gehalt $[SE]_{eff}$ oberhalb von 28,9 Gew. %
liegt, wobei für den effektiven Bor-Gehalt die Beziehung
30 gilt:

$$1,814 - 0,0303 [SE]_{eff} \leq [B]_{eff} \leq 1,396 - 0,01491 [SE]_{eff}$$

4. Legierung nach Anspruch 1 oder 2,
35 dadurch gekennzeichnet,
daß der Seltenen-Erden-Gehalt $[SE]_{eff}$ oberhalb von 28,5 Gew. %
liegt, wobei für den effektiven Bor-Gehalt die Beziehung gilt:

17

$$1,814 - 0,0303 [SE]_{\text{eff}} \leq [B]_{\text{eff}} \leq 1,478 - 0,01801 [SE]_{\text{eff}}$$

5. Legierung nach Anspruch 4,
dadurch gekennzeichnet,
5 daß der Seltenen-Erden-Gehalt $[SE]_{\text{eff}}$ oberhalb von 28,7 Gew.% liegt.

6. Legierung nach einem der Ansprüche 1 bis 5,
dadurch gekennzeichnet,
10 daß die Legierung einen Co-Gehalt zwischen 2,5 und 3,5 Gew.% aufweist.

7. Legierung nach einem der Ansprüche 1 bis 6,
dadurch gekennzeichnet,
15 daß der Cu-Gehalt zwischen 0,1 und 0,2 Gew.% liegt.

8. Legierung nach einem der Ansprüche 1 bis 7,
dadurch gekennzeichnet,
daß der Ga-Gehalt zwischen 0,20 und 0,30 Gew.% liegt.
20

9. Legierung nach einem der Ansprüche 1 bis 8,
dadurch gekennzeichnet,
daß die Seltenen Erden aus der Gruppe der Elemente Nd, Pr,
Dy, Tb ausgewählt sind.
25

10. Verfahren zur Herstellung eines Dauermagneten aus einer Legierung nach einem der Ansprüche 1 bis 9 mit folgenden Verfahrensschritten:
- Orientieren im Magnetfeld und Pressen von Pulver, das
30 durch Zerkleinern wenigstens eines Schmelzkörpers hergestellt worden ist, zu einem Grünling;
- Sintern des Grünlings bei Temperaturen zwischen 1020 °C und 1140 °C;
- Abkühlen des Grünlings auf Temperaturen unterhalb von 300 °C, wobei oberhalb von 800 °C mit einer mittleren Kühlgeschwindigkeit $\Delta T_1/\Delta t_1 < 5$ K/min abgekühlt wird; und
35

- Anlassen und Abkühlen des Grünlings, wobei für die Anlaßtemperatur T_A in Abhängigkeit von einer mittleren Kühlgeschwindigkeit $\Delta T_2/\Delta t_2$ folgende Beziehungen gelten:

5 für $\Delta T_2/\Delta t_2 < 5 \text{ K/min}$:

$450 \text{ }^\circ\text{C} \leq T_A \leq 550 \text{ }^\circ\text{C}$ für $[B]_{\text{eff}} < 2,993 - 0,069 \text{ } [\text{SE}]_{\text{eff}}$
 $460 \text{ }^\circ\text{C} \leq T_A \leq 510 \text{ }^\circ\text{C}$ für $[B]_{\text{eff}} > 2,993 - 0,069 \text{ } [\text{SE}]_{\text{eff}}$

10 für $5 \text{ K/min} \leq \Delta T_2/\Delta t_2 \leq 100 \text{ K/min}$:

$450 \text{ }^\circ\text{C} \leq T_A \leq 550 \text{ }^\circ\text{C}$.

11. Verfahren nach Anspruch 10,
15 dadurch gekennzeichnet,
daß nach dem Sintern der Grünling für eine Zeit zwischen ei-
ner halben Stunde und 2 Stunde auf einer Haltetemperatur zwi-
schen 700 und 800 $^\circ\text{C}$ gehalten wird.

20 12. Verfahren nach Anspruch 11,
dadurch gekennzeichnet,
daß der Rohkörper nach dem Sintern von Haltetemperatur mit
einer mittleren Kühlgeschwindigkeit $\Delta T_3/\Delta t_3 > 5 \text{ K/min}$ abge-
kühlt wird.

25 13. Verfahren nach Anspruch 12,
dadurch gekennzeichnet,
daß die Kühlgeschwindigkeiten $\Delta T_2/\Delta t_2$ und $\Delta T_3/\Delta t_3$ zwischen
30 und 50 K/min liegen.

30 14. Verfahren nach Anspruch 10 oder 11,
dadurch gekennzeichnet,
daß der Rohkörper nach dem Sintern von Haltetemperatur mit
einer mittleren Kühlgeschwindigkeit $\Delta T_3/\Delta t_3 < 5 \text{ K/min}$ abge-
kühlt wird.

19

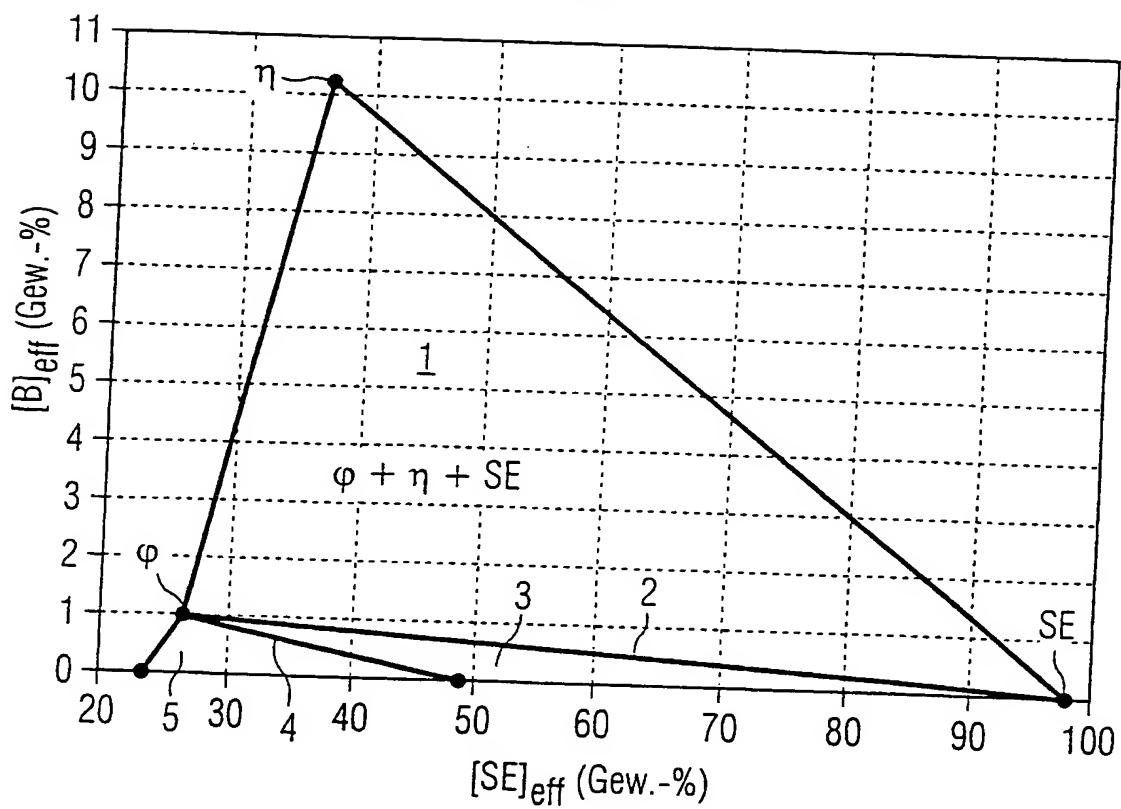
15. Verfahren nach Anspruch 14,
dadurch gekennzeichnet,
daß die Kühlgeschwindigkeiten $\Delta T_1/\Delta t_1$ bis $\Delta T_3/\Delta t_3$ zwischen 1
und 2 K/min liegen.

5



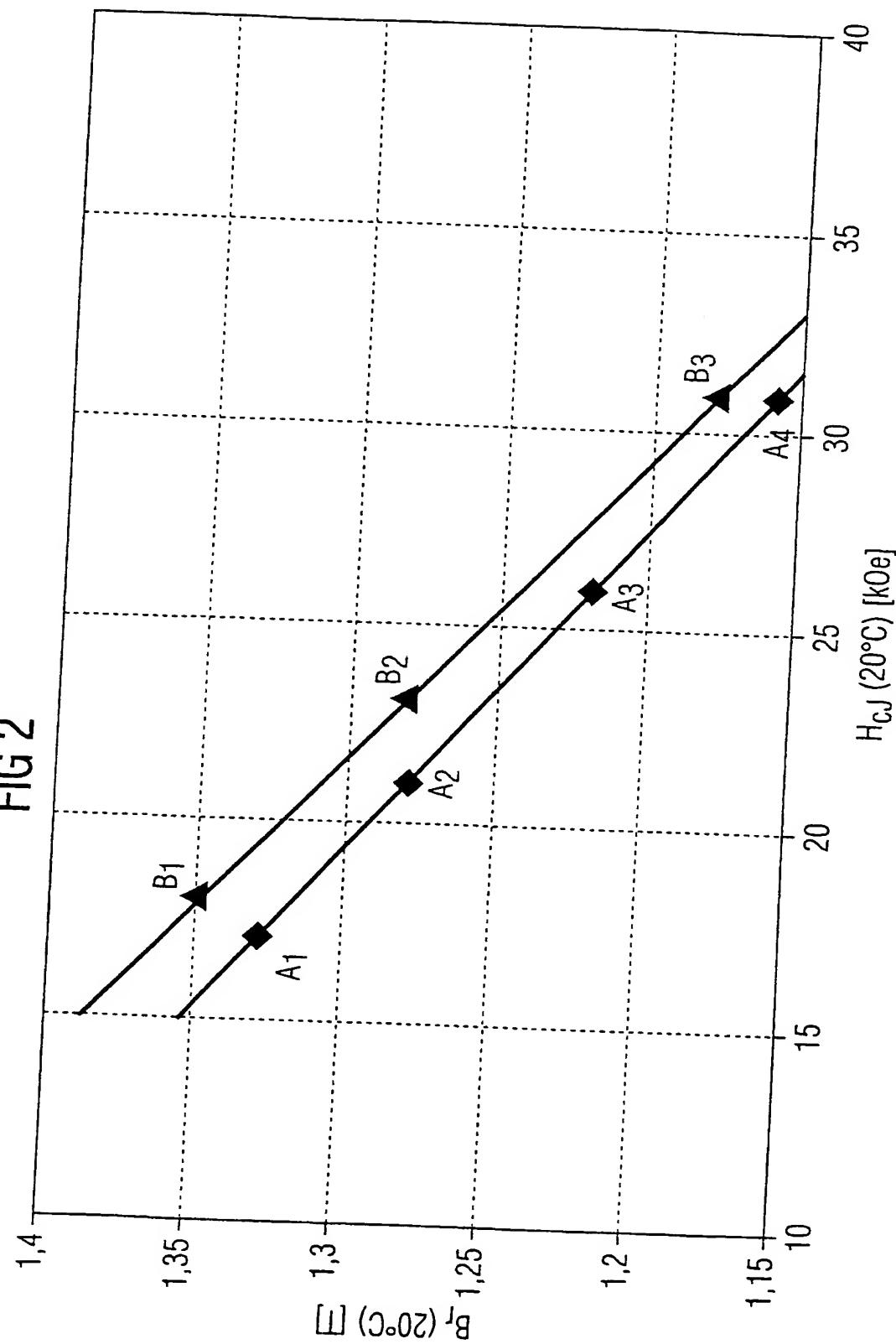
1/9

FIG 1



2/9

FIG 2



3/9

FIG 3

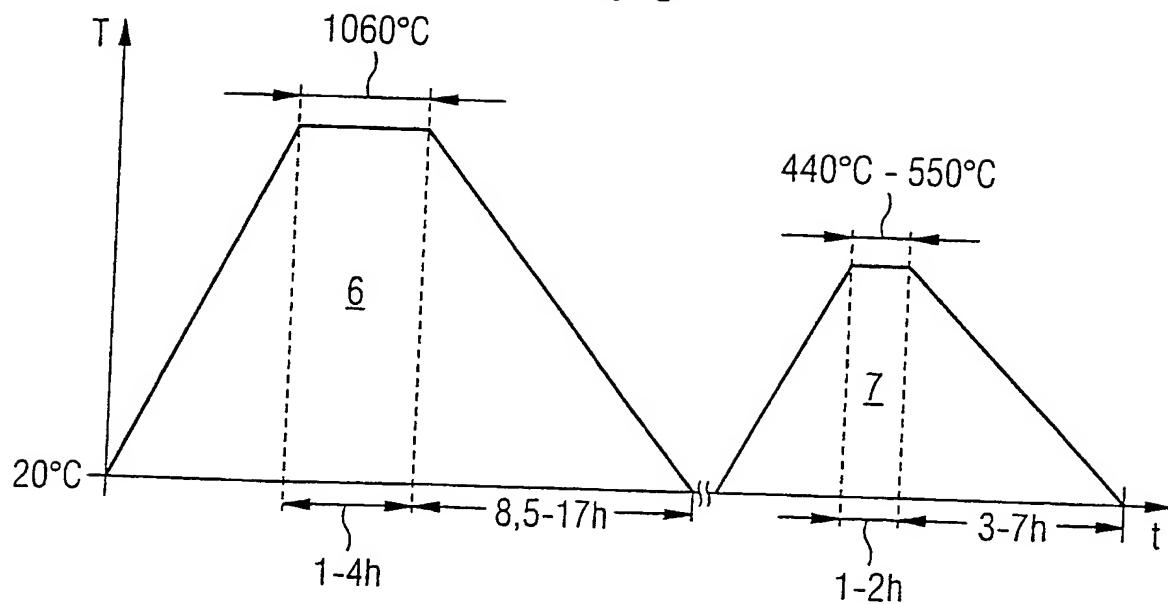
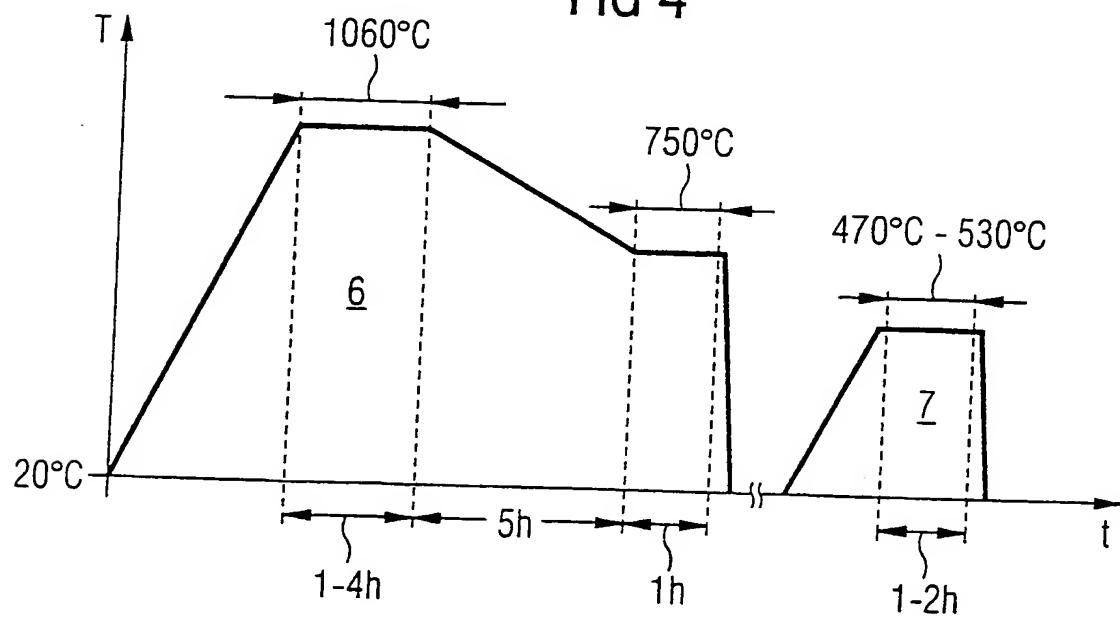
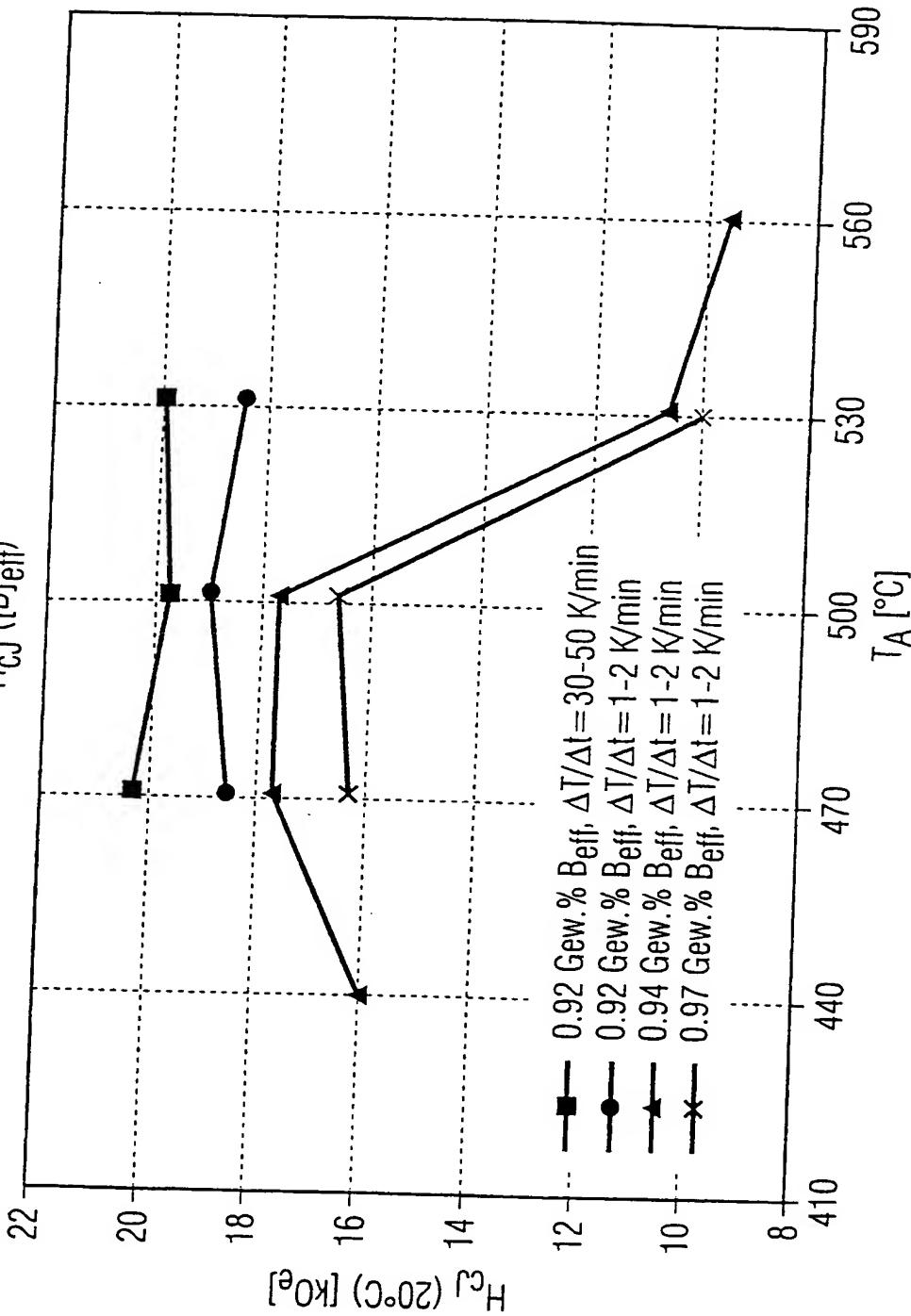


FIG 4



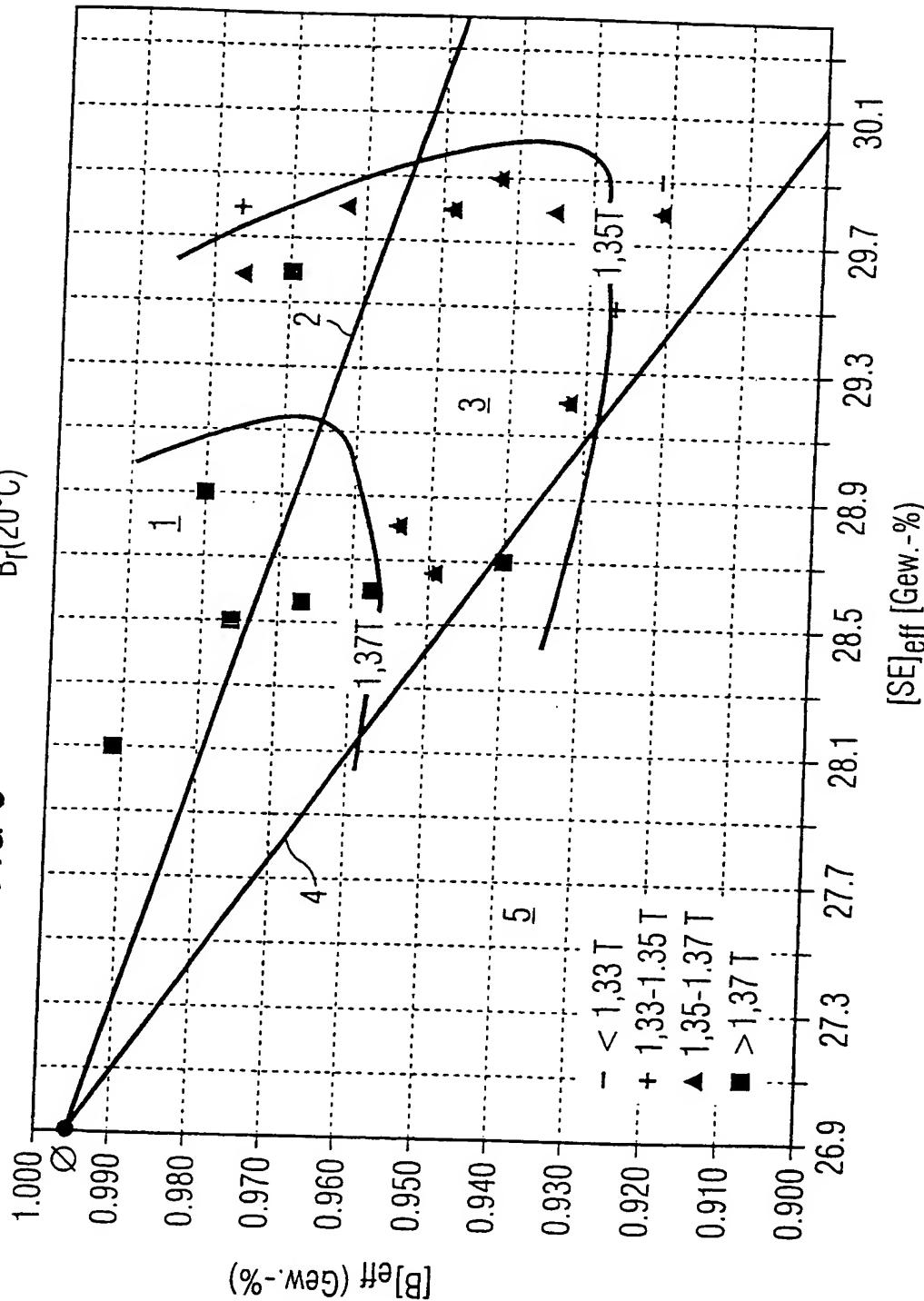
4/9

FIG 5



5/9

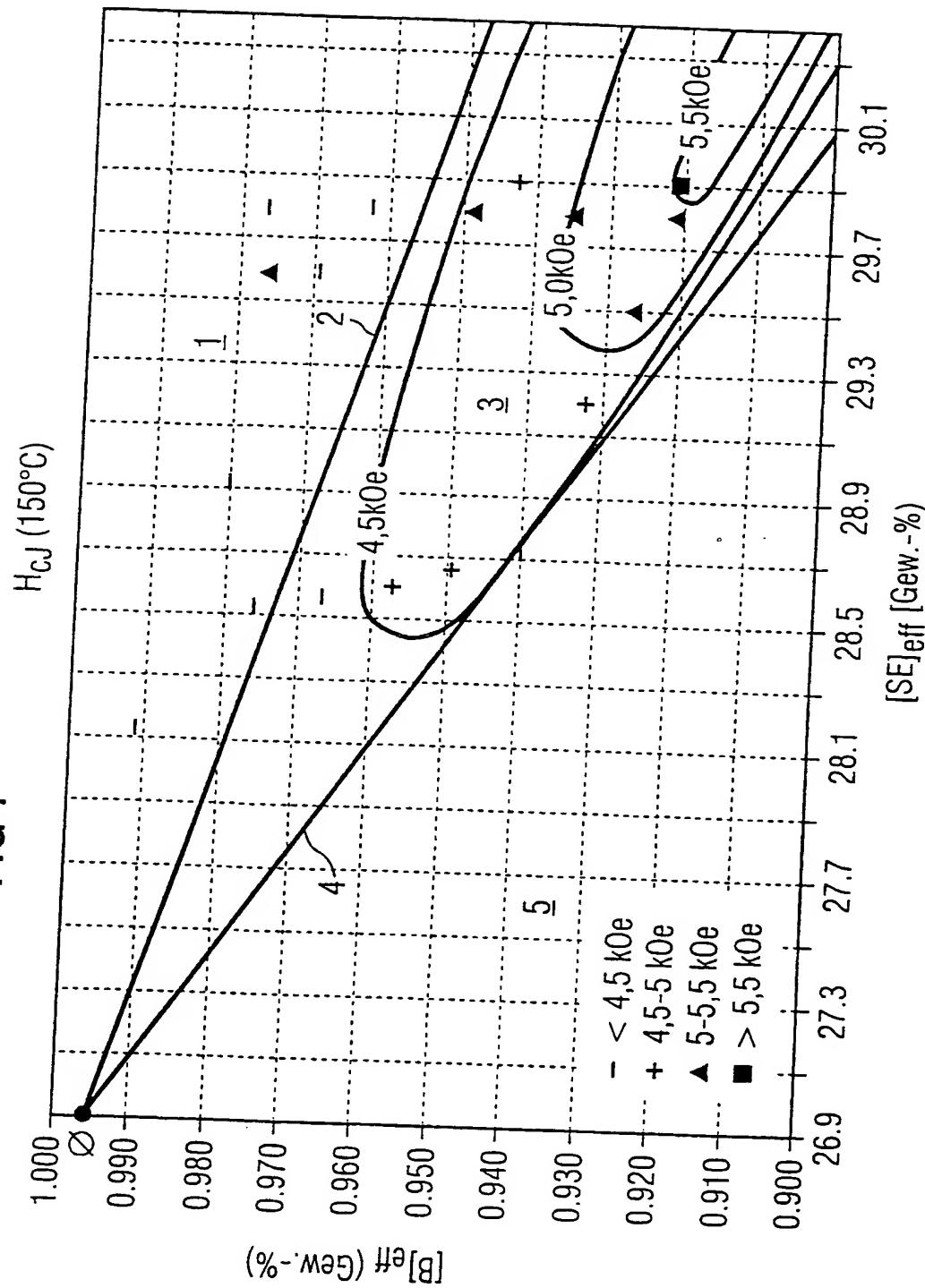
FIG 6





6/9

FIG 7





7/9

FIG 8

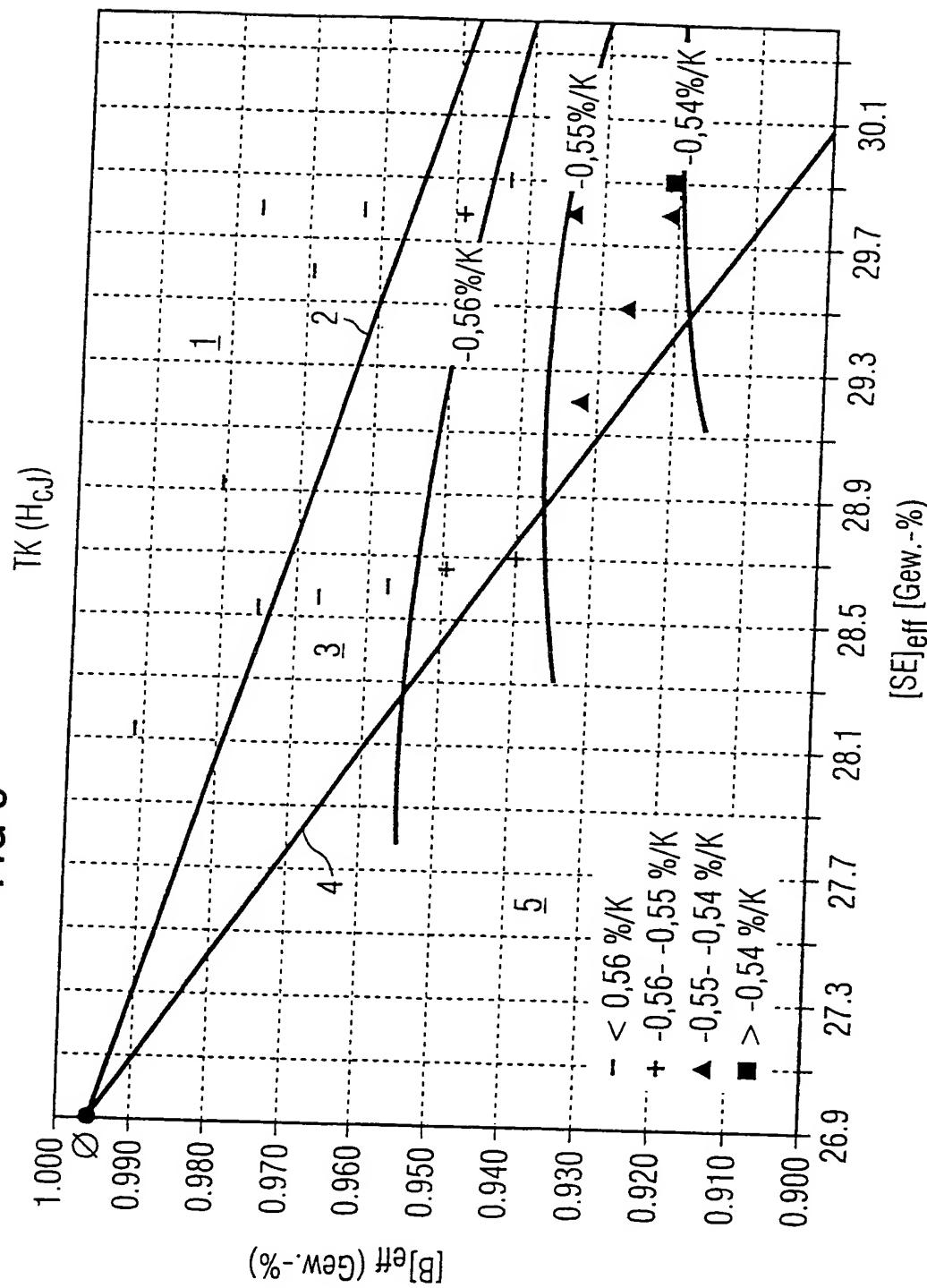
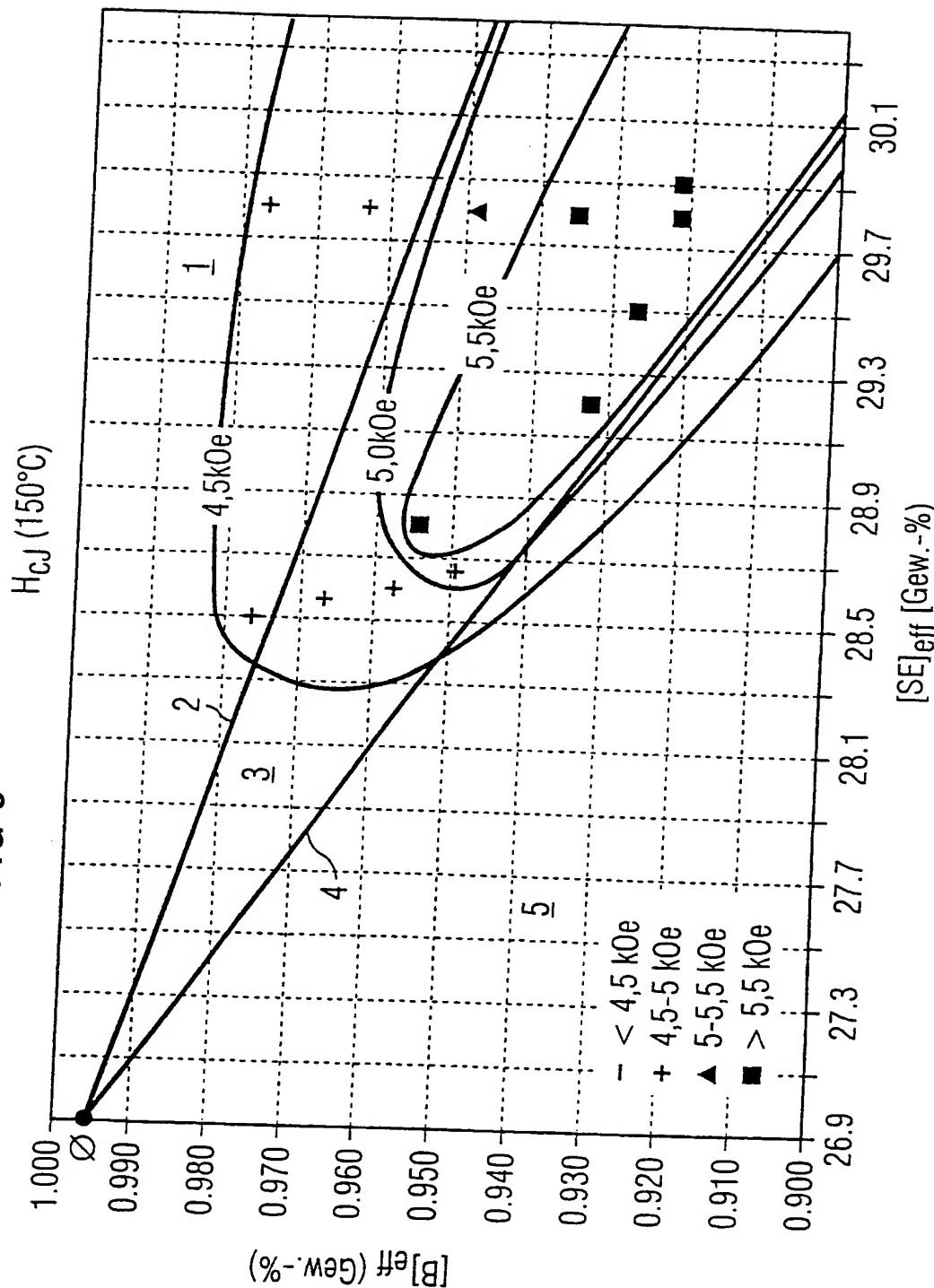
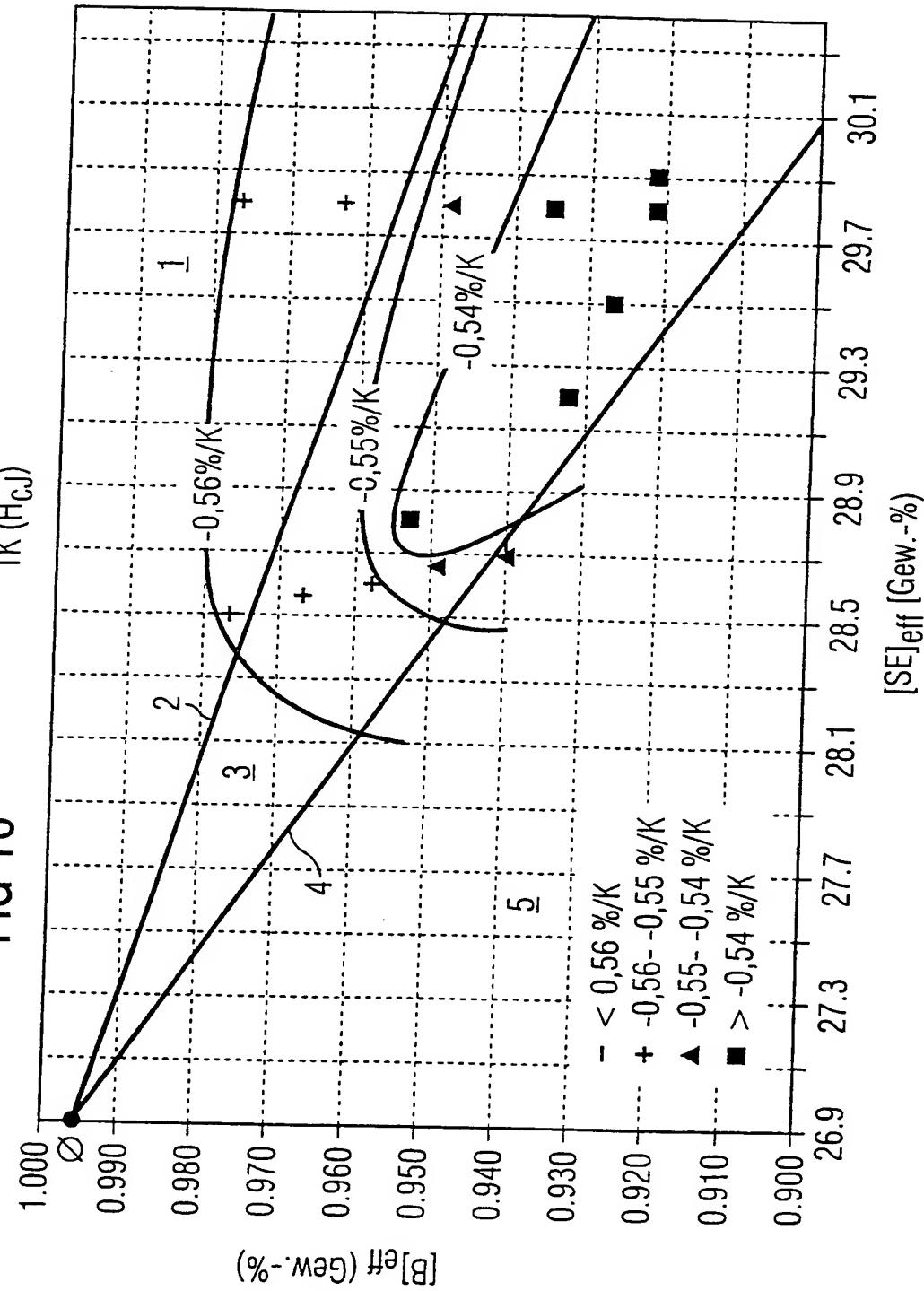


FIG 9



9/9

FIG 10



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 00/09128

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 H01F1/057

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 H01F

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, PAJ, WPI Data, INSPEC

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|----------|--|-----------------------|
| X | EP 0 680 054 A (CRUCIBLE MATERIALS CORP) 2 November 1995 (1995-11-02) | 1,9 |
| A | page 3, line 19 - line 30; claims 1-6; table 10 --- | 10 |
| X | EP 0 753 867 A (HITACHI METALS LTD) 15 January 1997 (1997-01-15) | 1,9 |
| A | claims 1,4; table 2 --- | 10 |
| X | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1999, no. 01, 29 January 1999 (1999-01-29) & JP 10 289813 A (HITACHI METALS LTD), 27 October 1998 (1998-10-27) abstract --- | 1,9 |
| | -/- | |

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

T later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

X document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

Y document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

& document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

24 November 2000

Date of mailing of the international search report

30/11/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Decanniere, L

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

| | |
|--------------|--------------------|
| Interr | nal Application No |
| /EP 00/09128 | |

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|----------|--|-----------------------|
| X | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1996, no. 11, 29 November 1996 (1996-11-29) & JP 08 181010 A (HITACHI METALS LTD), 12 July 1996 (1996-07-12) abstract ----- | 1,9 |

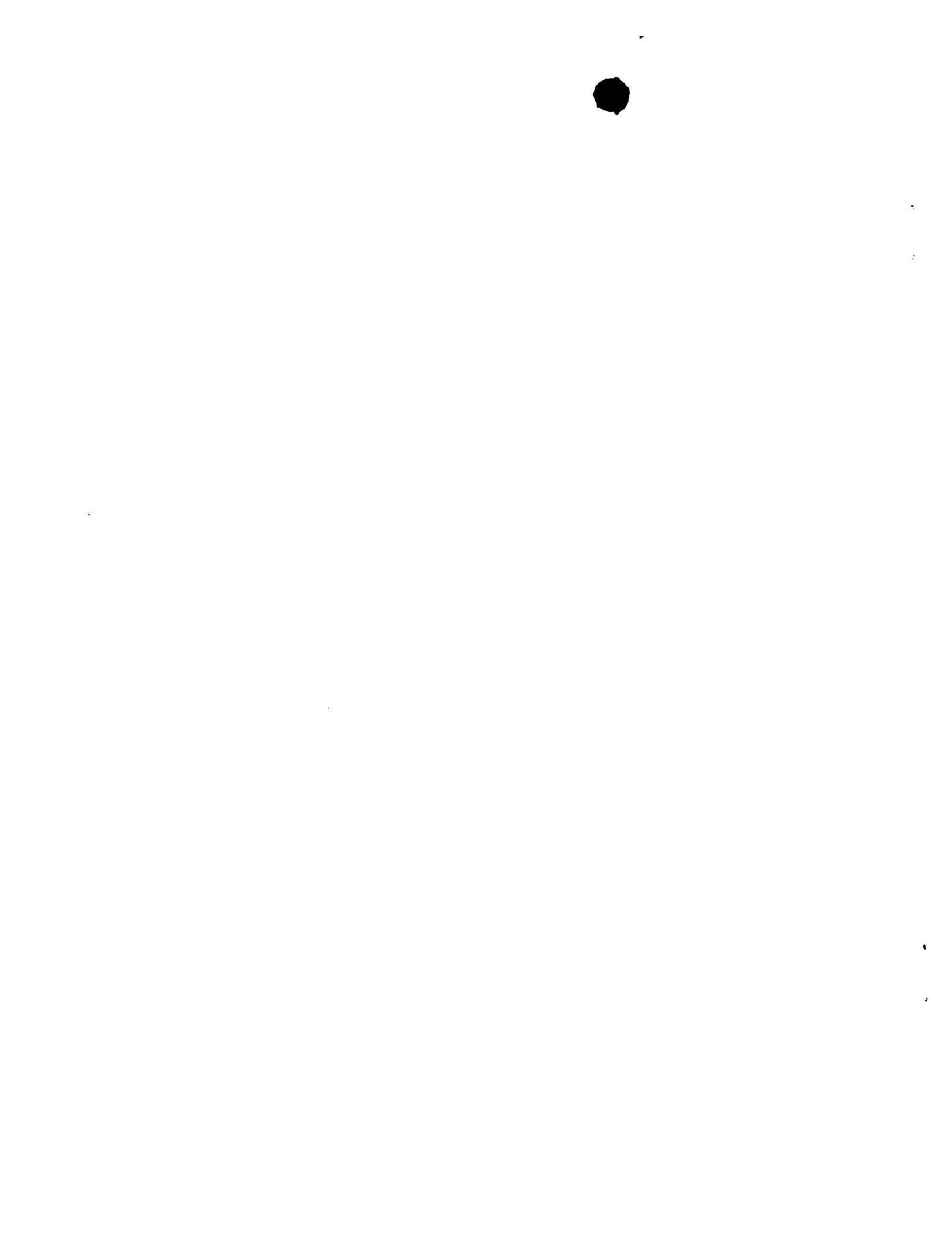
INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/09128

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | | | Publication date |
|--|------------------|-------------------------|------------|------------|------------------|
| EP 0680054 A | 02-11-1995 | US | 5480471 A | 02-01-1996 | |
| | | DE | 69503957 D | 17-09-1998 | |
| | | DE | 69503957 T | 14-01-1999 | |
| | | US | 5589009 A | 31-12-1996 | |
| EP 0753867 A | 15-01-1997 | JP | 9027409 A | 28-01-1997 | |
| | | JP | 2966342 B | 25-10-1999 | |
| | | JP | 9260122 A | 03-10-1997 | |
| | | CN | 1157992 A | 27-08-1997 | |
| | | US | 6080245 A | 27-06-2000 | |
| | | US | 5858123 A | 12-01-1999 | |
| | | US | 5997804 A | 07-12-1999 | |
| JP 10289813 A | 27-10-1998 | NONE | | | |
| JP 08181010 A | 12-07-1996 | NONE | | | |



**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
DEM GEBIET DES PATENTWESENS**

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

| | | |
|---|---|--|
| Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts vac328wo | WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5 | |
| Internationales Aktenzeichen PCT/ EP 00/ 09128 | Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 18/09/2000 | (Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 24/09/1999 |
| Anmelder VACUUMSCHMELZE GMBH et al. | | |

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.

Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.

zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. **Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen** (siehe Feld I).

3. **Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung** (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der Zeichnungen ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. 7

wie vom Anmelder vorgeschlagen

weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

keine der Abb.

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP 00/09128

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 H01F1/057

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 H01F

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, PAJ, WPI Data, INSPEC

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie ^a | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------------------|--|--------------------|
| X | EP 0 680 054 A (CRUCIBLE MATERIALS CORP) 2. November 1995 (1995-11-02) | 1,9 |
| A | Seite 3, Zeile 19 – Zeile 30; Ansprüche 1-6; Tabelle 10 --- | 10 |
| X | EP 0 753 867 A (HITACHI METALS LTD) 15. Januar 1997 (1997-01-15) | 1,9 |
| A | Ansprüche 1,4; Tabelle 2 --- | 10 |
| X | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1999, no. 01, 29. Januar 1999 (1999-01-29) & JP 10 289813 A (HITACHI METALS LTD), 27. Oktober 1998 (1998-10-27) Zusammenfassung --- | 1,9 |
| | | -/- |

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

| | |
|---|---|
| • Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : | |
| •A• Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist | •T• Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmelde datum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist |
| •E• älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmelde datum veröffentlicht worden ist | •X• Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden |
| •L• Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchebericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) | •Y• Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist |
| •O• Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht | •&• Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist |
| •P• Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmelde datum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist | |

| | |
|---|---|
| Datum des Abschlusses der internationalen Recherche | Absendedatum des internationalen Recherchenberichts |
| 24. November 2000 | 30/11/2000 |
| Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016 | Bevollmächtigter Bediensteter Decanniere, L |

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP 00/09128

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|---|--------------------|
| X | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1996, no. 11, 29. November 1996 (1996-11-29) & JP 08 181010 A (HITACHI METALS LTD), 12. Juli 1996 (1996-07-12) Zusammenfassung ----- | 1,9 |



PCT

NOTIFICATION OF ELECTION
(PCT Rule 61.2)

| | | |
|--|--|---|
| Date of mailing: 05 April 2001 (05.04.01) | | Arlington, VA 22202 ETATS-UNIS D'AMERIQUE in its capacity as elected Office |
| International application No.: PCT/EP00/09128 | | Applicant's or agent's file reference: vac328wo |
| International filing date: 18 September 2000 (18.09.00) | | Priority date: 24 September 1999 (24.09.99) |
| Applicant: KATTER, Matthias et al | | |

1. The designated Office is hereby notified of its election -- 1

in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on:

16 January 2001 (16.01.01)

in a notice effecting later election filed with the International Bureau on

2. The election was

was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit ...
Rule 32.2(b).

**The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland**

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer:

J. Zahra
Telephone No.: (41-22) 338.83.38

**VERTRAG ÜBER D[REI] INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM
GEBIET DES PATENTWESENS**

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



T4

| | | |
|---|---|---|
| Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts vac328wo | WEITERES VORGEHEN | siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416) |
| Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/09128 | Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 18/09/2000 | Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 24/09/1999 |
| Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK H01F1/057 | | |
| Anmelder VACUUMSCHMELZE GMBH et al. | | |
| <p>1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 8 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p><input type="checkbox"/> Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).</p> <p>Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.</p> | | |
| <p>3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <ul style="list-style-type: none"> I <input checked="" type="checkbox"/> Grundlage des Berichts II <input type="checkbox"/> Priorität III <input type="checkbox"/> Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erforderliche Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit IV <input type="checkbox"/> Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung V <input checked="" type="checkbox"/> Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erforderlichen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung VI <input type="checkbox"/> Bestimmte angeführte Unterlagen VII <input checked="" type="checkbox"/> Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung VIII <input checked="" type="checkbox"/> Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung | | |

| | |
|--|--|
| Datum der Einreichung des Antrags 16/01/2001 | Datum der Fertigstellung dieses Berichts 10.12.2001 |
| Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde: Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465 | Bevollmächtigter Bediensteter Haering, C Tel. Nr. +49 89 2399 8010 |



**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/09128

I. Grundlag des B richts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17): Beschreibung, Seiten:*).

1-15 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-15 ursprüngliche Fassung

Zeichnungen, Blätter:

1/9-9/9 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/09128

Beschreibung, Seiten:
 Ansprüche, Nr.:
 Zeichnungen, Blatt:

5. Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erforderlichen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

| | |
|--------------------------------|--|
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche 10-15 Nein: Ansprüche 1-9 |
| Erforderliche Tätigkeit (ET) | Ja: Ansprüche 10-15 Nein: Ansprüche |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (GA) | Ja: Ansprüche 1-15 Nein: Ansprüche |

2. Unterlagen und Erklärungen siehe Beiblatt

VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:
siehe Beiblatt

VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:
siehe Beiblatt

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Offenbarungen:

- D1: EP-A-0 680 054
- D2: EP-A-0 753 867
- D3: PATENT ABSTRACTS OF JAPAN JP 10 289813 A
- D4: PATENT ABSTRACTS OF JAPAN JP 08 181010 A

- 1.1. Dokument D1 offenbart eine Legierung eines Dauermagneten aus folgenden Elementen (Seite 2, Zeilen 29 bis 38):
 - a. 27 bis 35 Gew.% Seltene Erden, wovon mehr als die Hälfte Neodym ist,
 - b. 0,8 bis 1,3 Gew.% Bor,
 - c. bis zu 30 Gew.% Cobalt,
 - d. bis zu 1 Gew.% Kupfer und/oder Gallium (vorzugsweise 0,05 bis 0,5 Gew.%),
 - e. bis zu 5 Gew.% Aluminium und
 - f. Eisen (40 - 75 Gew.%).

g. Eine Legierung nach Anspruch 1 (mit 1 Gew.% Bor) wird in den Beispielen in Tabelle IX auf Seite 9 gegeben.

h. Das Verfahren zur Herstellung des Dauermagneten wird auf Seite 3, Zeilen 19 bis 37 beschrieben und unterscheidet sich von dem der vorliegenden Anmeldung dadurch, daß nach dem Sintern bei 900-1100°C der Magnet zweimal getempert wird, bei 800-900°C und bei 450-750°C. Keine Kühlgeschwindigkeit wird angegeben.
- 1.2. Dokument D2 offenbart eine Legierung eines Dauermagneten aus folgenden Elementen (Zusammenfassung, Anspruch 1):
 - a. 27 bis 31 Gew.% Seltene Erden,
 - b. 0,5 bis 2 Gew.% Bor,
 - c. 0,3 bis 5 Gew.% Cobalt,
 - d. 0,01 bis 1,0 Gew.% Kupfer, 0,01 bis 0,5 Gew.% Gallium,
 - e. 0,02 bis 2 Gew.% Aluminium, und
 - f. der Rest besteht aus Eisen.

g. Eine Legierung nach Anspruch 1 (mit 1 Gew.% Bor) wird in den Beispielen 5, 9 in

Tabelle 2 auf Seite 14, Beispielen 12, 13 und Vergleichsbeispiel 10 in Tabelle 7 auf Seite 18 gegeben.

h. Das Verfahren zur Herstellung des Dauermagneten wird auf Seite 6, Zeilen 30 bis 46 beschrieben und unterscheidet sich von dem der vorliegenden Anmeldung dadurch, daß nach dem Sintern bei 1000-1200°C der Magnet zweimal getempert wird, bei 800-1000°C und bei 400-650°C. Keine Kühlgeschwindigkeit wird angegeben.

1.3. Dokument D3 offenbart eine Legierung eines Dauermagneten aus folgenden Elementen (Zusammenfassung, Anspruch 1):

- 27 bis 31 Gew.% Seltene Erden,
- 0,8 bis 1,2 Gew.% Bor,
- 0,5 bis 50 Gew.% Cobalt, und
- 0,01 bis 1,0 Gew.% Kupfer, Gallium, und/oder
- Aluminium, und
- der Rest besteht aus Eisen.

g. Eine Legierung nach Anspruch 1 wird in den Beispielen 1 (Teil [0012]), 2 (Teil [0013]) und dem Vergleichsbeispiel 3 (Teil [0016]) gegeben.

h. Das Verfahren zur Herstellung des Dauermagneten wird in Teil [0012] beschrieben und unterscheidet sich von dem der vorliegenden Anmeldung dadurch, daß nach dem Sintern bei 1070°C wird das Magnet zweimal getempert, bei 900°C und bei 480°C. Keine Kühlgeschwindigkeit wird angegeben.

1.4. Dokument D4 offenbart eine Legierung eines Dauermagneten aus folgenden Elementen (Zusammenfassung, Anspruch 1):

- 27 bis 36 Gew.% Seltene Erden,
- 0,95 bis 1,2 Gew.% Bor,
- bis zu 6 Gew.% Cobalt, und
- bis zu 0,5 Gew.% Kupfer, bis zu 0,5 Gew.% Gallium,
- 0,1 bis 1,0 Gew.% Aluminium, und
- der Rest besteht aus Eisen.

g. Keine Legierung mit einem effektiven Borgehalt von weniger als 1 Gew.% ist jedoch offenbart.

h. Das Verfahren zur Herstellung des Dauermagneten wird in Teil [0011] beschrieben und unterscheidet sich von dem der vorliegenden Anmeldung: nach dem Sintern wird

das Magnet zweimal getempert, bei 800-1000°C und bei 450-650°C. Keine Kühlgeschwindigkeit wird angegeben.

2. *Neuheit:*

- 2.1. Der Gegenstand des Anspruchs 1 ist nicht neu nach Artikel 33(1) und (2) PCT gegenüber den Dokumenten D1 bis D4 (siehe 1.1.a. bis 1.1.g., 1.2.a., etc..), unter der Berücksichtigung der Klarheitseinwände unter Punkt VIII, 1.b..
- 2.2. Sowie bei Anspruch 1, ist der Gegenstand des Anspruchs 2 auch nicht neu.
- 2.3. Der Gegenstand der Ansprüche 3 bis 9 ist nicht neu gegenüber D3 (siehe 1.3.).
- 2.4. Der Gegenstand des Anspruchs 10 ist neu, da keiner der im Recherchenbericht zitierten Dokumente auf ein Verfahren nach diesem Anspruch hinweist.

3. *Erfinderische Tätigkeit:*

Dokument D1 (D2, D3, oder D4), das als nächstliegender Stand der Technik angesehen wird, offenbart (vgl. 1.1.h., 1.2.h, ...) ein Verfahren, von dem sich der Gegenstand des Anspruchs 10 dadurch unterscheidet, daß das erste Anlassen während des Abkühlens beim Sintern erfolgt, und die Abkühlgeschwindigkeiten festgelegt sind.

Die mit der vorliegenden Erfindung zu lösende Aufgabe kann somit darin gesehen werden, die neue Legierung nach Anspruch 1 herzustellen.

Die in Anspruch 10 der vorliegenden Anmeldung für diese Aufgabe vorgeschlagene Lösung beruht auf einer erforderlichen Tätigkeit, weil kein Hinweis auf den notwendigen Phasenbestand der Magnetischen Legierung im Stand der Technik gegeben wird. Außerdem unterscheiden sich die Schritte des Verfahrens von denen des im Stand der Technik üblichen Verfahrens.

Zu Punkt VII

B stimmt Mängel d r internationalen Anmeldung

1. Die auf Seiten 1 (Z. 24, 25, 26 und 30), 2 (Z. 7), 6 (Z. 17, 18 und 19), 9 (Tab. 2), 10 (Z. 21, 25), 12 (Z. 18, 19), 14 (Tab. 3) und 15 (Tab. 4) und Fig. 2, 5, 7 und 9 verwendeten Einheiten "kOe" und "bar" sind zusätzlich mit den SI-Einheiten nach Regel 10.1 PCT anzugeben.
2. Im Anspruch 10, "Anlassen und Abkühlen des Grünlings" heißt eher "Anlassen und Abkühlen des gesinterten Körpers".

Zu Punkt VIII

Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

1. Anspruch 1 ist unklar nach Artikel 6 PCT aus folgenden Gründen:
 - a. Die Grenzwerte, die den effektiven Gehalt an seltenen Erde bestimmen, sind arbitrarisch ausgewählt und nicht von der Beschreibung unterstützt (maximal 33 Gew.%, obwohl es in allen Beispielen weniger als 30 Gew.% ist).
 - b. Der Gehalt an Bor ist als Funktion des Gehalts an seltenen Erden definiert, die Funktion findet aber keine Basis in der Beschreibung. Umgerechnet liegt dieser zwischen 0,7264 und 0,997 Gew.%, wobei 0,7262 Gew.% weit außerhalb des untersuchten Bereichs (Beispiele) liegt. Einfacher wäre gleich den Gehalt zwischen 0,9 und 1,0 Gew.% zu definieren bzw. zu beanspruchen, wie es in diesem Bescheid angenommen worden ist.
 - c. Das gleiche gilt für die Grenzwerte der anderen Elemente.
 - d. Aluminium ist in der Beschreibung weder zitiert noch erwähnt.
 - e. Der Gehalt [Dy + Tb + Ho] ist nicht beschrieben (nur Dy, Seiten 8 und 9).
 - f. Daß der Gehalt an Eisen dem Rest der Zusammensetzung der Legierung entspricht, fehlt.
2. Anspruch 2 ist auch nicht von der Beschreibung unterstützt (siehe 1.a. und c.).
3. Die Ansprüche 3 und 4, sowie die entsprechenden Abschnitte in der Beschreibung, sind unklar weil sie sich nur geringfügig unterscheiden:
 - im Anspruch 3 liegt der Gehalt $[SE]_{eff}$ oberhalb von 28,9 Gew.% und somit der Gehalt $[B]_{eff}$ unterhalb von 0,9651 Gew.%,
 - während im Anspruch 4 $[SE]_{eff}$ oberhalb von 28,5 Gew.% und $[B]_{eff}$ unterhalb von 0,9647 Gew.% liegt. Einer der beiden Anspruch scheint überflüssig zu sein.

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER
PRÜFUNGSBERICHT - BEIBLATT**

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/09128

4. Die Art und Weise, das "Anlassen und Abkühlen" bzw. die Anlaßtemperatur im Anspruch 10 zu beanspruchen, ist unklar; die angesprochenen Bereiche sind zwar in Fig. 5 zu erkennen, sie sind jedoch nicht von der Beschreibung unterstützt, entgegen den Anforderungen des Artikels 6 PCT.

Klarer (und einfacher) wäre T_A in Abhängigkeit der Geschwindigkeit anzugeben:

- für $\Delta T/\Delta t < 5 \text{ K/min}$, $440^\circ\text{C} < T_A < 560^\circ\text{C}$ (siehe Beschreibung S. 11, Z. 18-20)
- für $\Delta T/\Delta t > 5 \text{ K/min}$, $470^\circ\text{C} < T_A < 530^\circ\text{C}$ (siehe Beschreibung S. 11, Z. 25-27).



Translation

PATENT COOPERATION TREATY
PCT
INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT
(PCT Article 36 and Rule 70)

3

| | | |
|--|---|--|
| Applicant's or agent's file reference vac328wo | FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416) | |
| International application No. PCT/EP00/09128 | International filing date (day/month/year) 18 September 2000 (18.09.00) | Priority date (day/month/year) 24 September 1999 (24.09.99) |
| International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC H01F 1/057 | | |
| Applicant VACUUMSCHMELZE GMBH | | |

| |
|--|
| 1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36. |
| 2. This REPORT consists of a total of <u>8</u> sheets, including this cover sheet. |
| <input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT). These annexes consist of a total of _____ sheets. |
| 3. This report contains indications relating to the following items: I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report II <input type="checkbox"/> Priority III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited VII <input checked="" type="checkbox"/> Certain defects in the international application VIII <input checked="" type="checkbox"/> Certain observations on the international application |

| | |
|--|--|
| Date of submission of the demand 16 January 2001 (16.01.01) | Date of completion of this report 10 December 2001 (10.12.2001) |
| Name and mailing address of the IPEA/EP | Authorized officer |
| Facsimile No. | Telephone No. |

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP00/09128

I. Basis of the report

1. With regard to the **elements** of the international application:* the international application as originally filed the description:

pages 1-15, as originally filed

pages _____, filed with the demand

pages _____, filed with the letter of _____

 the claims:

pages 1-15, as originally filed

pages _____, as amended (together with any statement under Article 19)

pages _____, filed with the demand

pages _____, filed with the letter of _____

 the drawings:

pages 1/9-9/9, as originally filed

pages _____, filed with the demand

pages _____, filed with the letter of _____

 the sequence listing part of the description:

pages _____, as originally filed

pages _____, filed with the demand

pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

 the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)). the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)). the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing: contained in the international application in written form. filed together with the international application in computer readable form. furnished subsequently to this Authority in written form. furnished subsequently to this Authority in computer readable form. The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished. The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.4. The amendments have resulted in the cancellation of: the description, pages _____ the claims, Nos. _____ the drawings, sheets/fig. _____5. This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.
PCT/EP 00/09128

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

| | | | |
|-------------------------------|--------|-------|-----|
| Novelty (N) | Claims | 10-15 | YES |
| | Claims | 1-9 | NO |
| Inventive step (IS) | Claims | 10-15 | YES |
| | Claims | | NO |
| Industrial applicability (IA) | Claims | 1-15 | YES |
| | Claims | | NO |

2. Citations and explanations

1. *Disclosures:*

D1: EP-A-0 680 054

D2: EP-A-0 753 867

D3: PATENT ABSTRACTS OF JAPAN (JP-A-10 289 813)

D4: PATENT ABSTRACTS OF JAPAN (JP-A-08 181 010)

1.1 D1 discloses a permanent magnet alloy comprising the following elements (page 2, lines 29-38) (all percentages by weight):

a. 27-35% rare earths, of which neodymium represents more than half,

b. 0.8-1.3% boron,

c. up to 30% cobalt

d. up to 1% copper and/or gallium (preferably 0.05-0.5%),

e. up to 5% aluminium, and

f. iron (40-75%).

g. An alloy according to Claim 1 (containing 1% boron) is shown in the examples in Table IX on page 9.

h. The process for producing the permanent magnet is described on page 3, lines 19-37, and differs from the present application in that, after



sintering at 900-1100 DEG C, the magnet is twice tempered, at 800-900 and 450-750 DEG C. No cooling rate is indicated.

1.2 D2 discloses a permanent magnet alloy comprising the following elements (abstract, Claim 1) (all percentages by weight):

- a. 27-31% rare earths,
- b. 0.5-2% boron,
- c. 0.3-5% cobalt
- d. 0.01-1.0% copper, 0.01-0.5% gallium,
- e. 0.02-2% aluminium, and
- f. the remainder is comprised of iron.
- g. An alloy according to Claim 1 (containing 1% boron) is shown in Examples 5 and 9 in Table 2 on page 14 and Examples 12 and 13 and Comparative Example 10 in Table 7 on page 18.

h. The process for producing the permanent magnet is described on page 6, lines 30-46, and differs from the present application in that, after sintering at 1000-1200 DEG C, the magnet is twice tempered, at 800-1000 and 400-650 DEG C. No cooling rate is indicated.

1.3 D3 discloses a permanent magnet alloy comprising the following elements (abstract, Claim 1) (all percentages by weight):

- a. 27-31% rare earths,
- b. 0.8-1.2% boron,
- c. 0.5-50% cobalt
- d. 0.01-1.0% copper, gallium and/or
- e. aluminium, and
- f. the remainder is comprised of iron.

g. An alloy according to Claim 1 is shown in Examples 1 (Part [0012], 2 (Part [0013]) and

Comparative Example 3 (Part [0016]).

h. The process for producing the permanent magnet is described in Part [0012] and differs from the present application in that, after sintering at 1070 DEG C, the magnet is twice tempered, at 900 and 480 DEG C. No cooling rate is indicated.

1.4 D4 discloses a permanent magnet alloy comprising the following elements (abstract, Claim 1) (all percentages by weight):

- a. 27-36% rare earths,
- b. 0.95-1.2% boron,
- c. up to 6% cobalt, and
- d. up to 0.5 % copper, up to 0.5% gallium,
- e. 0.1-1.0% aluminium, and
- f. the remainder is comprised of iron.

g. However, no alloy with an effective boron content >1% is disclosed.

h. The process for producing the permanent magnet is described in Part [0011] and differs from the present application in that, after sintering, the magnet is twice tempered, at 800-1000 and 450-650 DEG C. No cooling rate is indicated.

2. ***Novelty:***

2.1 The subject matter of Claim 1 is not novel over D1-D4 (see 1.1.a - 1.1.g, 1.2.a, etc.) according to PCT Article 33(1) and (2), having regard to the objections to lack of clarity in Box VIII, 1.b.

2.2 The subject matter of Claim 2 is likewise not novel over D1-D4.

2.3 The subject matter of Claims 3-9 is not novel over D3 (see 1.3).

2.4 The subject matter of Claim 10 is novel, since none of the citations in the search report indicates a process according to this claim.

3. ***Inventive step***

D1 (or D2 or D3 or D4), which is considered to represent the closest prior art, discloses (cf. 1.1.h, 1.2.h, etc.) a process from which the subject matter of Claim 10 differs in that the first tempering of the alloy occurs during cooling in the sintering step and the cooling rates are fixed.

The problem addressed by the present invention may therefore be seen to consist in producing the novel alloy according to Claim 1.

The solution to this problem proposed in Claim 10 of the present application involves an inventive step because the prior art does not indicate the necessary phase composition of the magnetic alloy. Moreover, the process steps differ from those of the conventional prior art process.

VII. Certain defects in the international application

The following defects in the form or contents of the international application have been noted:

1. According to PCT Rule 10.1, the units "kOe" and "bar" (see **page 1**, lines 24, 25, 26 and 30, **page 2**, line 7, **page 6**, lines 17, 18 and 19, **page 9**, Table 2, **page 10**, lines 21 and 25, **page 12**, lines 18 and 19, **page 14**, Table 3, **page 15**, Table 4, and **Figures 2, 5, 7 and 9**) should also be expressed in terms of the metric system.

2. In Claim 10 the phrase "tempering and cooling of the green compact" should read more accurately "tempering and cooling of the sintered body".

VIII. Certain observations on the international application

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

1. Claim 1 is unclear (PCT Article 6) for the following reasons:
 - a. The limiting values determining the effective content of rare earths are selected arbitrarily and not supported by the description (maximum 33% by weight, although a content of >30% by weight is indicated in all the examples).
 - b. The content of boron is defined as a function of the content of rare earths; however, this function has no basis in the description. Conversion according to the formula indicated yields a content of between 0.7264 and 0.997% by weight, 0.7262% by weight being well outside the investigated range (examples). A simpler approach would be to define or to claim a content of between 0.9 and 1.0% by weight, as assumed in this report.
 - c. The same comment applies to the limiting values of the other elements.
 - d. Aluminium is neither cited nor mentioned in the description.
 - e. The content [Dy + Tb + Ho] is not described (only Dy, pages 8 and 9).
 - f. There is no indication that iron comprises the remainder of the alloy composition.

VIII. Certain observations on the international application

2. Claim 2 is also not supported by the description (see 1.a. and c.).
3. Claims 3 and 4 and the corresponding sections of the description are unclear because they differ only insignificantly from each other:
 - in Claim 3 the content of $[SE]_{eff}$ is $>28.9\%$ by weight and that of $[B]_{eff}$ is thus $<0.9651\%$ by weight,
 - whereas in Claim 4 the content of $[SE]_{eff}$ is $>28.5\%$ by weight and that of $[B]_{eff}$ is $<0.9647\%$ by weight. One of the two claims appears to be redundant.
4. The wording used to claim "tempering and cooling" or the tempering temperature in Claim 10 is unclear; although the relevant ranges are shown in Figure 5, they are not supported by the description, contrary to the requirements of PCT Article 6.

It would be clearer (and simpler) to indicate T_A as a function of rate:

- for $\Delta T/\Delta t < 5\text{K}/\text{min}$, $440 \text{ DEG C} < T_A < 560 \text{ DEG C}$ (see the description, page 11, lines 18-20)
- for $\Delta T/\Delta t > 5\text{K}/\text{min}$, $470 \text{ DEG C} < T_A < 530 \text{ DEG C}$ (see the description, page 11, lines 25-27).



PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

| | | | | |
|--|--|---|----|--|
| Date of mailing (day/month/year) 05 April 2001 (05.04.01) | | From the INTERNATIONAL BUREAU To: WESTPHAL, MUSSGNUG & PARTNER Mozartstrasse 8 80336 München ALLEMAGNE | | |
| | | Westphal · Mussgnug & Partner Patentanwälte 80336 München | | |
| | | Eing. 17. APR. 2001 | | |
| | | Frist | WV | not.  |
| Applicant's or agent's file reference vac328wo | | IMPORTANT NOTICE | | |
| International application No. PCT/EP00/09128 | International filing date (day/month/year) 18 September 2000 (18.09.00) | Priority date (day/month/year) 24 September 1999 (24.09.99) | | |
| Applicant VACUUMSCHMELZE GMBH et al | | | | |

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:
US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:
EP,JP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 05 April 2001 (05.04.01) under No. WO 01/24203

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a **demand for international preliminary examination** must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the **national phase**, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

| | |
|--|---|
| The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35 | Authorized officer J. Zahra Telephone No. (41-22) 338.83.38 |
|--|---|

